

## LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

## LE RADIUM

INTENSITÉS ABSOLUES DES RAYONNEMENTS ÉMIS PAR  $^{52}\text{V}$ 

Par R. BOUCHEZ et G.-A. RENARD.

Laboratoire de Chimie nucléaire. Collège de France. Paris.

**Sommaire.** — Le rapport des nombres absolus de photons de 1,5 MeV et d'électrons émis au cours de la désintégration  $\beta$  de  $^{52}\text{V}$  a été trouvé égal à  $0,65 \pm 0,1$ .

Nous avons mis en évidence un groupe d'électrons mous pouvant provenir de la conversion interne d'un rayonnement  $\gamma$  d'environ 250 keV. Ce rayonnement pourrait être émis lors d'une transition isomérique du  $^{52}\text{V}$ .

## I. — Introduction.

Le nuclide  $^{52}\text{V}$  radioactif  $\beta^-$  a été mis en évidence par Fermi [1] avec une période de 3,75 mn; Walke [2] trouve une période de  $(3,9 \pm 0,1)$  mn.

L'étude de ce noyau a été reprise au Collège de France. T. Yuasa [3], par la méthode de la chambre de Wilson, obtient un spectre  $\beta^-$  simple dont l'énergie maximum est 2,7 MeV; elle observe également des paires d'électrons de matérialisation correspondant à des photons  $\gamma$  de  $(1,5 \pm 0,1)$  MeV.

Martelly [4] confirme la période de  $^{52}\text{V}$  trouvée par Fermi en obtenant  $(3,74 \pm 0,01)$  mn; il mesure l'énergie du rayonnement  $\gamma$  par absorption dans Fe, Cu et Pb et trouve  $(1,45 \pm 0,05)$  MeV. Par numération des photons à l'aide d'une chambre d'ionisation [5], et par numération des électrons à l'aide d'un compteur de Geiger-Müller, il détermine le nombre de photons émis par chaque désintégration et le trouve voisin de  $1/3$ .

Employant les méthodes de Dunworth [6] et de Norling [7], G. A. Renard [8] étudie ensuite la relation entre les rayonnements  $\beta$  et  $\gamma$ . Il trouve des coïncidences  $\beta\gamma$ . En absorbant le rayonnement  $\beta$  le nombre de coïncidences  $\beta\gamma$  par rayon  $\beta$  reste constant (fig. 1). Si l'on suppose le spectre  $\beta$  simple et le rayonnement  $\gamma$  uniquement composé de photons de 1,5 MeV environ chaque émission  $\beta^-$  est alors accompagnée d'un photon. Ce résultat est en désaccord avec celui de Martelly.

Pour la numération des photons nous avons utilisé le même dispositif que Martelly. Pour la numération des électrons nous avons déterminé l'angle solide effectif du compteur  $\beta$  : dans une première série de mesures par comparaison avec des sources étalons de RaE, dans une deuxième série, par l'emploi de la méthode des coïncidences.

En outre nous avons mis en évidence un groupe d'électrons mous à l'aide d'un compteur  $\beta$  à paroi mince. L'étude de l'origine de ce rayonnement mou a été entreprise en effectuant des coïncidences  $\beta\beta$  et des coïncidences  $\gamma\gamma$ . Nous avons essayé aussi d'observer un rayonnement  $\gamma$  responsable de ces électrons en étudiant la variation des coïncidences  $\beta\gamma$  en fonction de l'absorption du rayonnement  $\gamma$  et en utilisant la méthode de l'effet de transition.

## II. — Appareillage.

**Les compteurs.** — 1° *Compteurs à rayons  $\beta$ .* — Compteurs à coque d'Al (fig. 2) remplis d'un mélange de 10 pour 100 d'alcool et 90 pour 100 d'argon (pression totale 10 cm de Hg). Ces compteurs ont les caractéristiques suivantes : seuil 900 V, point de fonctionnement 1000 V, longueur du palier 200 V, pente du palier 1 pour 100 pour 10 V. Les paliers ont été déterminés à intervalles réguliers, et des mesures d'étalon ont toujours encadré nos expériences.



2° *Compteurs à rayons  $\gamma$ .* — Compteurs, à coque de Cu (variant de 0,1 mm à 2,4 mm), de dimensions semblables aux compteurs à rayons  $\beta$  et de caractéristiques comparables.

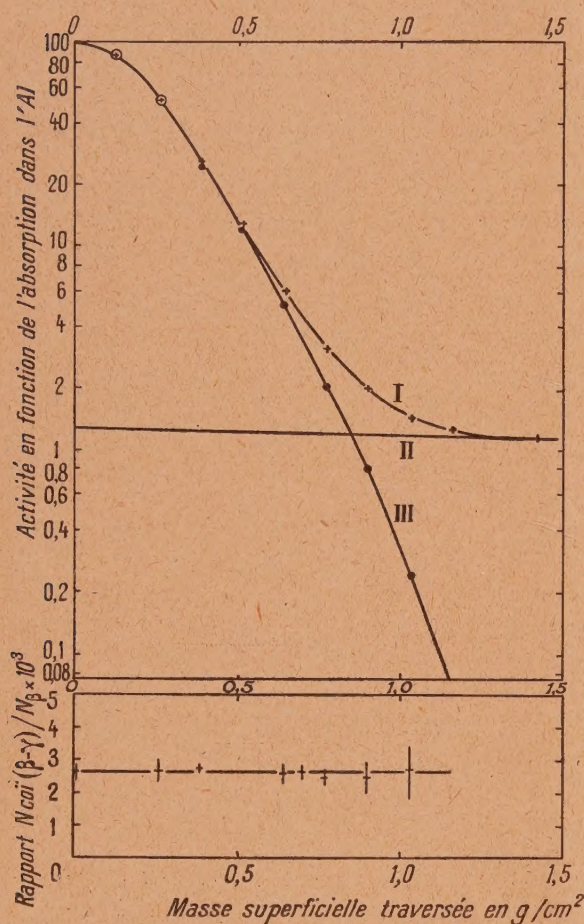


Fig. 1. — a. Courbe d'absorption du rayonnement  $\beta$  de  $^{52}\text{V}$ , dans l'Al.

b. Nombre de coïncidences  $\beta$ - $\gamma$ , par rayon  $\beta$ , en fonction de l'absorption du rayonnement  $\beta$ .

3° *Compteurs à paroi mince.* — Compteurs comprenant une coque de 1 mm de Cu percée d'une fenêtre de 1 cm² environ et recouvert d'une feuille d'Al de 4,9 mg/cm².

Mêmes caractéristiques. Mouvement propre : 20 à 25 coups/mn.

*Amplificateur à coïncidences. Système de numération.* — Amplificateur [9] construit en série par les soins du C. E. A. (1). Système de numération comprenant un numérateur rapide [9], et une échelle de mille [10] construite par le C. E. A. L'étalonnage

du système de numération a été faite à l'aide des radioéléments,  $^{52}\text{V}$  (3,74 mn) et  $^{128}\text{I}$  (24,99 mn). Les pertes dues au compteur ont été déterminées expérimentalement. Elles sont négligeables jusqu'au taux de comptage de 10000/mn qui n'a pas été dépassé au cours de nos expériences.

*Chambre d'ionisation.* — Nous avons utilisé une chambre d'ionisation (2) reliée à un amplificateur

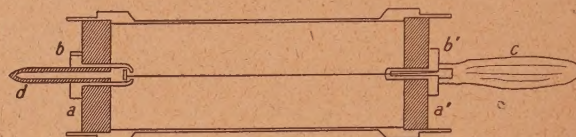


Fig. 2. — Compteur de Geiger-Müller à rayons  $\beta$  (coque Al 0,1 mm d'épaisseur, fil tungstène 0,1 mm; a, a', rondelles de pyrex; b, b', pièces de garde; c, fiche banane; d, tube de remplissage).

à lampe électromètre. L'ensemble de l'appareil avait été construit et étalonné par Savel [5]. La précision de la méthode est de l'ordre de 5 à 10 pour 100. Cet appareil permet de mesurer des courants jusqu'à une intensité de  $10^{-6}$  u.e.s. Avant et après chaque mesure, une mesure d'étalon de Ra a été effectuée.

### III. — Résultats expérimentaux.

A. *Détermination du nombre de rayons  $\gamma$  et d'électrons émis par  $^{52}\text{V}$ .* — Un sachet de cellophane contenant 1 à 2 g de  $\text{V}_2\text{O}_5$  est bombardé pendant 10 mn par des neutrons lents. Après chaque irradiation une quantité variant de 0,5 à 1 g sert à déterminer le nombre de photons  $\gamma$ ; simultanément quelques milligrammes sont prélevés pour l'étude du nombre d'électrons. (Les irradiations ont été effectuées à l'aide du cyclotron du Collège de France.)

A<sub>1</sub>. *DÉTERMINATION DU NOMBRE DE PHOTONS  $\gamma$ .* — 1° *Méthode de la chambre d'ionisation.* — L'oxyde de vanadium actif est introduit dans un cylindre de verre fermé à une extrémité par une feuille de cellophane mince de 3 mg/cm².

Le nombre de photons  $\gamma$  s'obtient à partir de l'intensité totale produite dans la chambre d'ionisation par le rayonnement global ( $\beta$  et  $\gamma$ ). Cette intensité a été trouvée, avec notre dispositif expérimental, environ cinq fois plus grande que celle produite uniquement par le rayonnement  $\gamma$ .

Le nombre  $N_\gamma$  de photons est lié à l'intensité  $I$

(2) Chambre remplie d'Argon à une pression de 8 kg/cm², fermée par une fenêtre d'Al de 15/100° de millimètre d'épaisseur. Angle solide d'utilisation 1/2000° stéradian environ.

(1) Commissariat Français à l'Énergie Atomique.



qu'ils produisent par la relation

$$N_q = \frac{AI \cdot \frac{10^3}{P} \cdot 60}{KW(\tau_A + \chi_A + \sigma_e)a}$$

dans laquelle :

- $N_q$ , nombre de photons par minute, par gramme de  $V_2O_5$  et à la fin de l'irradiation pris comme temps zéro;
- $I$ , intensité extrapolée au temps  $t = 0$ ;
- $P$ , poids de matière utilisé dans l'expérience et exprimé en milligrammes;
- $K$ , efficacité de la chambre pour le rayonnement étudié. On l'obtient à partir de la courbe donnée par Savel [5];
- $W$ , énergie du rayonnement  $\gamma$ ;

- $\chi_A, \tau_A, \sigma_e$ , coefficients d'absorption par effet photo-électrique, de matérialisation et d'absorption vraie par effet Compton;
- $a$ , absorption du rayonnement  $\gamma$  entre la source et le gaz de la chambre;
- $A$ , constante indépendante du rayonnement  $\gamma$ , dépend uniquement de l'angle solide utilisé, des dimensions de la chambre d'ionisation, de la pression et de la nature du gaz qu'elle contient.

Dans le cas d'un rayonnement  $\gamma$  simple de 1,5 MeV l'erreur relative moyenne sur  $N_q$  est de l'ordre de 10 à 15 pour 100. Les résultats des mesures sont indiqués dans le Tableau I, colonne 1 dans le cas où l'on suppose un photon  $\gamma$  de 1,5 MeV émis par désintégration (hypothèse 1).

TABLEAU I.

Date d'expérience.	$N_{q(1 ou 2)}$ $\cdot 10^3$ (***).	$N_{e1} \cdot 10^3$ .	$N_{e2} \cdot 10^3$ .	$\left(\frac{N_q}{N_e}\right)_1$ .	$\left(\frac{N_q}{N_e}\right)_2$ .
17 janvier.....	1,9	3,3	2,7	0,58	0,70
7 février.....	2,05	4,7	3,5	0,63	0,85
	4,5	6,2	5	0,73	0,90
13 » .....	2,6	4,4	3,8	0,59	0,69
	2,6 (*)				
	3	4	3,6	0,75	0,84
14 » .....	2,2	3,8	3,4	0,58	0,65
	4	5,5	4,6	0,73	0,87
21 » .....	1,5	2,2	2	0,68	0,76
6 mars.....	1,8	2,4	2,2	0,75	0,82
Valeur moyenne pondérée...	-	-	-	0,65±0,1	0,80±0,12
Erreur (en pour 100).....	10 (**)	10	15	16	15
(*) Valeurs obtenues par la méthode N. Marty. (**) Pour $N_{q2}$ l'erreur est plus importante ~ 15 pour 100. (***) Les indices 1, 2, mis aux quantités $N_q, N_e, N_q/N_e$ indiquent qu'elles ont été déterminées dans les hypothèses 1. 2.					

2° Méthode de N. Marty. — La détermination du nombre absolu de photons a été effectuée également à l'aide d'un compteur  $\gamma$  de 1,2 mm Cu (épaisseur suffisante pour arrêter les électrons émis par <sup>52</sup>V).  
Le rendement du compteur pour le rayonnement étudié a été obtenu en utilisant la méthode de N. Marty [11]. Cet auteur a bien voulu effectuer à l'aide de son dispositif quelques mesures simultanément aux nôtres. Ses résultats sont en accord avec ceux obtenus par la méthode de la chambre d'ionisation.  
A<sub>2</sub>. DÉTERMINATION DU NOMBRE D'ÉLECTRONS A L'AIDE D'UN COMPTEUR A PAROI D'AL DE 1/10<sup>e</sup> DE MILLIMÈTRE D'ÉPAISSEUR. — Le nombre d'électrons émis par le <sup>52</sup>V et le nombre d'impulsions

mesuré au compteur sont liés par la relation

$$N = N_e \frac{\Omega}{4\pi} p a_e$$

dans laquelle (3) :

- $N$ , est le nombre d'impulsions mesuré, déduction faite des électrons secondaires dus aux rayons  $\gamma$ , des électrons réfléchis par le support de source et les matériaux environnant le compteur, du mouvement propre;
- $N_e$ , nombre d'électrons émis par les atomes de <sup>52</sup>V dans les mêmes conditions;
- $\frac{\Omega}{4\pi}$ , angle solide moyen;

(3) Toutes ces valeurs s'entendent pour l'activité de 1 g de V<sup>2</sup>O<sub>5</sub> par minute à la fin de l'irradiation prise comme origine des temps.



$p$ , probabilité de détection d'un électron ayant pénétré à l'intérieur du compteur;

$a_c$ , coefficient de transmission tenant compte de l'absorption des électrons dans la matière même de la source et la paroi du compteur.

On estime le nombre d'impulsions dues aux électrons secondaires produits par le rayonnement  $\gamma$  de la manière suivante : On canalise les électrons à l'aide d'un écran d'Al d'épaisseur suffisante pour les arrêter et percé d'un trou de quelques millimètres de diamètre. Soit  $N_1$  le nombre de coups/minute ainsi mesuré, on remplace l'écran d'Al par un écran plein de même épaisseur; soit  $N_2$  le nouveau nombre de coups/minute mesuré. En supposant que le nombre d'électrons secondaires créés dans les deux écrans est le même,  $N_2$  représente la contribution dans le nombre  $N_1$  du mouvement propre et des électrons secondaires dus au rayonnement  $\gamma$ .

Lorsqu'il n'est pas possible de canaliser on estime le nombre d'impulsions produites par les électrons secondaires créés uniquement dans la paroi du compteur à partir de la courbe d'absorption du rayonnement ( $\beta + \gamma$ ). Dans ce dernier cas avec un rayonnement  $\gamma$  de 1,5 MeV,  $N_2$  est négligeable devant  $N_1$  ( $\frac{N_2}{N_1} < 10^{-2}$ ) pour un compteur à paroi d'Al de  $1/10^e$  de millimètre d'épaisseur. Ces deux méthodes donnent des résultats concordants. En ce qui concerne les électrons réfléchis, on diminue au maximum leur nombre, d'une part, en déposant  $V_2O_5$  actif dans une cuvette formée d'un cadre mince de plexiglas percé d'un trou au fond duquel est tendue une feuille de cellophane de 3 mg/cm<sup>2</sup>. (On n'utilise aucun matériau pour couvrir la source, celle-ci étant employée en position horizontale); d'autre part, on évite le voisinage d'éléments lourds autour du compteur (le mouvement propre qui était sous plomb de 8 cm/mn atteint dans ces conditions environ 25 cm/mn).  $a_c$  est estimé par extrapolation à zéro du début de la courbe d'absorption tracée en utilisant des écrans d'Al placés près de la paroi du compteur. On trouve avec un compteur d'Al de  $1/10^e$  de millimètre d'épaisseur  $a_c \simeq 90$  pour 100. On détermine  $\frac{\Omega}{4\pi} \times p = \sigma$  en utilisant plusieurs sources de référence d'intensité comparable à celle du  $^{52}V$ . Celles-ci sont des sources de RaD + RaE + Po en équilibre de régime et dont on a mesuré le rayonnement  $\alpha$  du Po; l'on admet qu'un rayon  $\alpha$  correspond à une désintégration  $\beta$  du RaE (ce qui est exact à 2 pour 100 près environ); elles ont été comparées à deux sources étalons (4). L'intensité des sources utilisées est de l'ordre de  $1/10^e$  à  $1/100^e$  u. e. s.

Pour comparer avec une bonne précision l'activité de  $^{52}V$  et de RaE on utilise des sources de  $V_2O_5$

de dimensions très petites (4 mm de diamètre) et d'un poids de l'ordre de 10 mg/cm<sup>2</sup>, celles de RaE étant quasi ponctuelles et déposées sur un support de cellophane mince (5).

On a alors

$$N_0 = N_R \varphi a_R.$$

$N_0$ , nombre d'impulsions par minute mesuré en se plaçant dans les mêmes conditions expérimentales que pour le  $^{52}V$ ;

$N_R$ , nombre d'électrons émis par minute dans  $4\pi$  par la source de RaE utilisée;

$a_R$ , absorption des rayons  $\beta$  du RaE dans la paroi du compteur; on la détermine par extrapolation à zéro du début de la courbe d'absorption. Une série de plusieurs mesures donne  $(44 \pm 1)$  pour 100.

Le nombre  $N_e$  cherché est donc

$$N_e = N_R \frac{N}{N_0} \frac{a_R}{a_c}.$$

Les résultats des mesures sont indiqués dans le Tableau I, colonne 3. La moyenne pondérée (Tableau I, colonne 6) des rapports  $\frac{N_q}{N_c}$ , dans l'hypothèse 1 où l'on suppose un rayon  $\gamma$  par désintégration  $\beta$ , est

$$\frac{N_q}{N_e} = 0,65 \pm 0,1.$$

Ce rapport étant inférieur à l'unité, nous essayons de le déterminer par une autre méthode.

A<sub>3</sub>. DÉTERMINATION DU NOMBRE D'ÉLECTRONS À L'AIDE DE LA MÉTHODE DES COÏNCIDENCES. — On réalise des coïncidences  $\beta$ - $\gamma$  en utilisant un compteur de  $1/10^e$  de millimètre de Al (compteur  $\beta$ ) et un compteur de 1,5 mm Cu (compteur  $\gamma$ ). Le compteur d'Al a une efficacité pratiquement négligeable pour les photons  $\gamma$  de 1,5 MeV, celui de Cu est pris d'une épaisseur suffisante pour arrêter tous les électrons. La source est placée entre les deux compteurs, à des distances telles que, le rendement du compteur  $\gamma$  soit grand et les réflexions des électrons sur le compteur  $\gamma$  peu nombreuses. De fait, en utilisant une source étroite, située à des distances telles que les angles solides correspondants  $\rho^\beta$  et  $\rho^\gamma$  soient environ  $5 \cdot 10^{-2}$  et  $20 \cdot 10^{-2}$  (en supposant  $p$  voisin de l'unité), le nombre d'impulsions dans le compteur  $\beta$  dues aux réflexions des électrons sur le compteur  $\gamma$ , est environ de 8 pour 100 pour le  $^{52}V$  et le RaE.

Soient  $N_1$  le nombre d'impulsions produites dans le compteur  $\beta$  (corrigé de l'effet des rayons  $\gamma$ , du mouvement propre, des réflexions),  $N_2$  le nombre d'impulsions produites dans le compteur  $\gamma$ ,  $N_{12}$  le nombre de coïncidences, correction faite du mou-

(4) Nous exprimons notre gratitude envers le Professeur I. Curie pour avoir mis à notre disposition ces précieux étalons.

(5) Nous remercions G. Bouissières de l'aide qu'il a bien voulu nous apporter en préparant les sources de RaE.



vement propre, des coïncidences fortuites <sup>(6)</sup>.  
Si l'on suppose le spectre  $\beta$  simple et le rayonnement  $\gamma$  formé uniquement de photons de 1,5 MeV couplés aux particules  $\beta$ , on peut écrire

$$\begin{aligned} N_1 &= N \rho^\beta a_e, \\ N_2 &= N \rho^\gamma a_\gamma, \\ N_{12} &= N \rho^\beta a_e \rho^\gamma a_\gamma, \end{aligned}$$

$N$ , est le nombre de désintégration de <sup>52</sup>V;  
 $\rho^\gamma a_\gamma$ , est le rendement du compteur  $\gamma$ , se décomposant en  $\rho^\gamma$ ;  
 $\rho^\gamma$ , angle solide,  $a_\gamma$ , efficacité du compteur  $\gamma$  pour le rayonnement considéré.

La connaissance de  $\rho^\beta$  permet la détermination de  $N$ ; on obtient  $\rho^\beta$  en mesurant  $N_{12}$  et  $N_2$

$$\frac{N_{12}}{N_2} = \rho^\beta a_e.$$

La moyenne pondérée des valeurs obtenues est

$$\rho^\beta a_e = (4,3 \pm 0,2) \cdot 10^{-2},$$

d'où l'on déduit

$$\rho^\beta = (4,8 \pm 0,4) \cdot 10^{-2}.$$

or la valeur directe de  $\rho^\beta$  obtenue par comparaison à des sources de RaE d'intensité comparable est

$$\rho^\beta = (3,9 \pm 0,3) \cdot 10^{-2}.$$

Ces valeurs sont des moyennes portant chacune sur dix mesures. Elles ne se recouvrent pas. En rapprochant ce résultat, inexplicable *a priori*, avec le nombre de photons émis par électron  $\frac{N_\gamma}{N_e} = 0,65 \pm 0,1$ , et après réétalonnage des sources de RaE, nous concluons que l'hypothèse des rayonnements  $\beta$  et  $\gamma$ , simples et couplés l'un à l'autre est insuffisante.

#### A<sub>4</sub>. DÉTERMINATION DU NOMBRE D'ÉLECTRONS À L'AIDE D'UN COMPTEUR À PAROI D'AL DE 4,9 mg/cm<sup>2</sup>.

— Les valeurs  $\frac{N_{12}}{N_2} = \rho^\beta a_e$  et  $\rho^\beta$  redeviennent cohérentes si l'on prend pour  $a_e$  un nombre plus grand que l'unité. C'est-à-dire si l'on suppose que les impulsions  $N_1$  ne sont pas dues uniquement aux électrons du spectre  $\beta$ .

Nous avons réétudié le début de la courbe d'absorption avec le compteur à fenêtre fermé par une paroi très mince. La courbe (fig. 3) obtenue présente dans ce cas une remontée du nombre d'impulsions, à partir de 50 mg/cm<sup>2</sup> environ, due à un rayonnement électronique mou. L'énergie maximum de ces électrons est estimée *grosso modo* à 250 keV.

(6) Le nombre de coïncidences fortuites  $N_f$  est donné par la relation  $N_f = 2 \tau N_1 N_2$ ,  $\tau$  étant le pouvoir de résolution de l'amplificateur à coïncidences  $\tau = 2 \cdot 10^{-8}$  mn; au cours de ces expériences nous avons opéré à des taux de comptage tels que  $N_f$  était dans la plupart des cas négligeable.

Une partie de ces électrons traverse la paroi du compteur de 1/10<sup>e</sup> de millimètre d'Al augmentant le nombre des impulsions attribuées aux négatons du spectre continu  $\beta$  du <sup>52</sup>V; toutefois le nombre d'électrons mous ayant ainsi traversé la paroi de 1/10<sup>e</sup> n'est pas assez considérable pour les mettre en évidence avec un tel compteur.

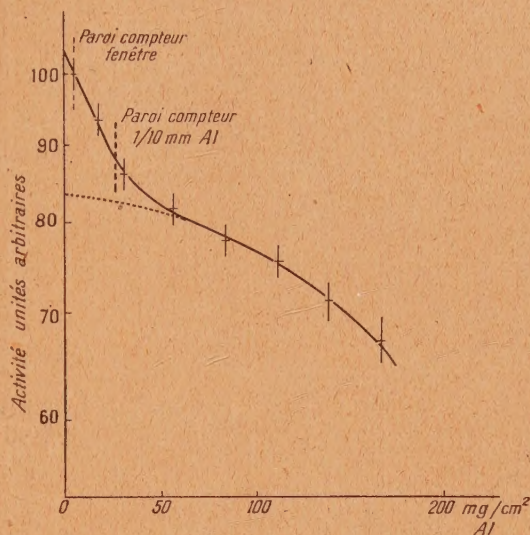


Fig. 3. — Courbe d'absorption, dans l'Al, du rayonnement de <sup>52</sup>V. En pointillé : extrapolation du spectre  $\beta$  d'énergie maximum 2,7 MeV.

D'après la courbe d'absorption on peut estimer le nombre d'électrons mous à environ 25 pour 100 rayons  $\beta$  du spectre continu.

Les expériences suivantes ont été faites en vue de déterminer l'origine de ces électrons mous.

#### B. Étude du groupe d'électrons mous par les coïncidences $\beta$ - $\beta$ . — B<sub>1</sub>. DISPOSITIF EMPLOYÉ.

— L'étude des coïncidences  $\beta$ - $\beta$  est entreprise avec un dispositif symétrique formé de deux compteurs identiques à parois d'Al de 1/10<sup>e</sup> de millimètre d'épaisseur (à défaut de deux compteurs à fenêtre du type décrit plus haut). La source est placée entre les deux compteurs, les angles solides d'utilisation étant très voisins et de l'ordre de  $7 \cdot 10^{-2}$  environ; les fausses coïncidences obtenues quand un électron, ayant déclenché le premier compteur, est réfléchi et vient déclencher le second compteur, sont peu importantes : elles ont cependant été estimées <sup>(7)</sup> à partir de sources de RaE d'intensités comparables à celles du <sup>52</sup>V; ces fausses coïncidences sont inférieures à une coïncidence  $\beta$ - $\beta$  pour 10<sup>4</sup>  $\beta$  dans un des compteurs.

(7) Nous avons négligé dans ce terme correctif la différence d'énergie des électrons du <sup>52</sup>V et du RaE.



B<sub>2</sub>. MESURES. — Les mesures obtenues sont indiquées dans le Tableau II. La moyenne pondérée des résultats est  $1,5 \pm 0,3$  coïncidences  $\beta$ - $\beta$  pour  $10^3 \beta$  dans un des compteurs. En étudiant d'autre part, la variation de  $\frac{N_{\beta\beta}}{N_\beta}$  en fonction de l'absorption du rayonnement en interposant symétriquement des écrans entre source et compteur, on observe que  $\frac{N_{\beta\beta}}{N_\beta}$  a tendance d'abord à décroître puis augmente ensuite pour des épaisseurs d'écran suffisantes par suite de l'apparition des coïncidences  $\beta$ - $\gamma$ . La présence des coïncidences  $\beta$ - $\gamma$  ne permet pas de préciser davantage la variation du rapport  $\frac{N_{\beta\beta}}{N_\beta}$ .

TABLEAU II.

Expérience.	$\frac{N_{\beta\beta}}{N_\beta}$	Erreur absolue.	Épaisseur d'écran (mm Al).
1.....	$1,2 \cdot 10^{-3}$	$0,2 \cdot 10^{-3}$	0
2.....	1,4	0,2	0
3.....	1,8	0,4	0
4.....	1,3	0,25	0
5.....	1,35	0,4	0
6.....	1	0,2	10/100
7.....	1,3	0,2	20/100
8.....	1	0,3	40/100
9.....	1,3	0,2	50/100
10.....	1,9	0,4	10/100

Si l'on suppose que les électrons mous, dont une partie traverse la paroi des compteurs utilisés dans cette expérience, sont émis quasi simultanément aux négatons du spectre continu  $\beta$  du  $^{52}\text{V}$  on peut calculer la valeur de  $\frac{N_{\beta\beta}}{N_\beta}$  pour le dispositif utilisé et la comparer à la valeur expérimentale. Supposons que la source émette  $N$  négatons primaires et  $Nx$  électrons mous avec des coefficients de transmission respectifs  $a_\beta$  et  $a_e$ , on peut écrire

$$N_\beta = N_1 = N_2 = N\rho(a_\beta + xa_e) - N\rho^2 a_\beta xa_e$$

$$N_{\beta\beta} = N_{12} = 2N\rho^2 a_\beta xa_e,$$

d'où

$$\frac{N_{\beta\beta}}{N_\beta} \approx \frac{2\rho a_\beta xa_e}{a_\beta + xa_e}.$$

Dans ces expériences  $\rho = 7 \cdot 10^{-2}$  à 10 pour 100 près pour les deux compteurs. Les quantités  $a_\beta$ ,  $x$ ,  $a_e$  estimées à partir de la courbe d'absorption du rayonnement électronique dans le compteur à paroi de  $20 \mu$  d'Al donnent :  $a_\beta \sim 0,95$ ;  $x \sim 25$  pour 100;  $a_e \sim 0,60$ . On obtient :  $\frac{N_{\beta\beta}}{N_\beta} = 15$

à  $20 \cdot 10^{-3}$ , ce qui est d'un ordre de grandeur supérieur à la valeur expérimentale.

Les électrons mous et les négatons du spectre  $\beta$  continu ne sont donc pas émis quasi simultanément.

Toutefois le petit nombre de coïncidences  $\beta$ - $\beta$  observées pourrait être dû à des réflexions, à une sous-estimation du nombre des fausses coïncidences.

Dans les expériences suivantes nous avons essayé de mettre en évidence un rayonnement  $\gamma$  mou dont la conversion partielle serait responsable des électrons mous observés.

C. Étude du rayonnement  $\gamma$ . Variation du rapport  $\frac{N_{\beta\gamma}}{N_\beta}$  avec l'absorption du rayonnement  $\gamma$ .

— C<sub>1</sub>. PRINCIPE DE LA MÉTHODE. — Supposons un rayonnement  $\gamma$  dur et un rayonnement  $\gamma$  mou. Soient C<sub>1</sub> et C<sub>2</sub> les courbes respectives d'absorption,

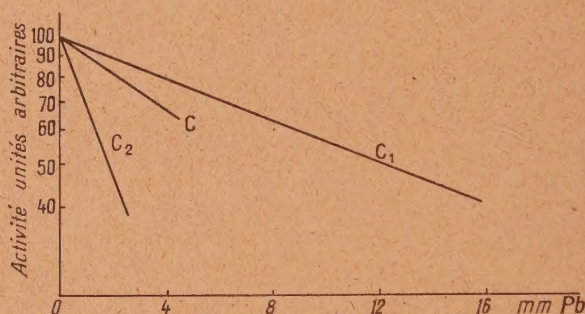


Fig. 4. — Schéma de l'absorption du rayonnement dans le Pb. C<sub>1</sub> rayonnement  $\gamma$  de 1,5 MeV; C<sub>2</sub> rayonnement  $\gamma$  de 0,250 MeV C, rayonnement complexe.

et C celle du rayonnement global (fig. 4). Le rapport  $\frac{N_{\beta\gamma}}{N_\beta}$  en fonction de l'absorption du rayonnement  $\gamma$  décroît (courbe  $\Gamma$ ) suivant C<sub>1</sub> ou C<sub>2</sub> selon que le rayonnement  $\beta$  est lié au rayonnement  $\gamma$  dur ou  $\gamma$  mou. Dans ces deux cas les courbes  $\Gamma$  et C sont différentes. Elles sont confondues si le rayonnement  $\beta$  est lié à la fois au  $\gamma$  dur et au  $\gamma$  mou. Si  $\gamma$  mou n'existe pas, les courbes  $\Gamma$ , C et C<sub>1</sub> sont confondues.

C<sub>2</sub>. MESURES ET INTERPRÉTATION. — On détermine les coïncidences  $\beta$ - $\gamma$  à l'aide du dispositif précédent, mais la distance de la source au compteur  $\gamma$  est augmentée pour permettre l'emploi d'écrans de Pb.

On trouve que les courbes C et  $\Gamma$  (fig. 5) sont confondues. Ce résultat permet de supposer soit que les deux rayonnements  $\gamma$  sont liés au rayonnement  $\beta$ , soit que le rayonnement  $\gamma$  mou n'existe pas. Or, d'après la conclusion du paragraphe précédent les électrons mous ne sont pas liés au spectre  $\beta$  continu, il en est donc de même du rayonnement  $\gamma$  mou associé. Nous sommes amenés à



conclure que le rayonnement  $\gamma$  mou n'existe pas. Toutefois s'il avait une intensité inférieure à 10 pour 100 de celle du rayonnement  $\gamma$  dur nous n'aurions pu le mettre en évidence.

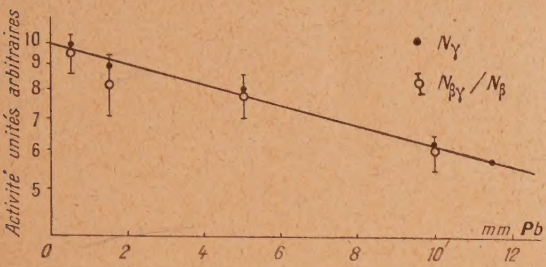


Fig. 5. — Absorption du rayonnement  $\gamma$  de <sup>52</sup>V. Points : rayonnement simple. Cercles et barres d'erreur : rapport du nombre de coïncidences  $\beta$ - $\gamma$  au nombre de rayons  $\beta$ .

Afin de confirmer cette première conclusion nous avons effectué deux autres expériences : l'une par l'emploi des coïncidences  $\gamma\gamma$ , l'autre en utilisant la méthode de l'effet de transition.

**D. Intensité du rayonnement  $\gamma$  mou. Étude des coïncidences  $\gamma$ - $\gamma$ .** — En éliminant le rayonnement électronique par un champ magnétique. — Le dispositif réalisé est celui indiqué par le schéma (6).

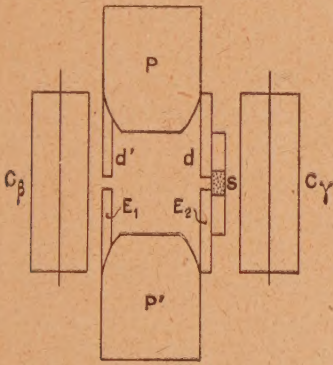


Fig. 6. — Schéma du dispositif d'étude de coïncidences  $\gamma$  dur,  $\gamma$  mou.

Le compteur  $C_\gamma$  arrête tous les électrons issus de S, le champ magnétique (5200 gauss) et les écrans  $E_1$  et  $E_2$  empêchent les électrons de parvenir en  $C_\beta$ .

Le nombre de coïncidences obtenu est diminué du mouvement propre et du nombre de coïncidences fortuites. La connaissance de ce dernier nécessite celle du temps de résolution  $\tau$  de l'appareil détecteur des coïncidences. Pour les taux de comptages variables utilisés dans ces expériences ( $N_1 \sim 5 \cdot 10^3$  et  $N_2 \sim 5 \cdot 10^4$  par minute au début de la mesure);  $\tau$  a été déterminé en soumettant les compteurs  $C_\beta$  et  $C_\gamma$  à des impulsions indépendantes.

Finalement nous avons trouvé  $(0,1 \pm 0,3)$  coïncidences  $\gamma$ - $\gamma$  pour  $10^3$  impulsions dans le compteur  $C_\beta$ , ce qui ne permet pas de conclure.

**E. Intensité du rayonnement  $\gamma$  mou; méthode de l'effet de transition Al/Au.** — La méthode de l'effet de transition utilise le rétablissement de l'équilibre entre le rayonnement  $\gamma$  primaire et ses photoélectrons secondaires quand le rayonnement  $\gamma$  passe d'un milieu dans un autre, ici de l'Al à l'Au. La source de photons  $\gamma$  est recouverte d'un écran d'Al d'épaisseur supérieure au parcours des électrons secondaires et l'on étudie l'absorption de ce rayonnement complexe ( $\gamma$  primaires et électrons secondaires) dans des écrans d'Au.

La forme des courbes obtenues dépend du dispositif expérimental utilisé, celui-ci a été étalonné par le rayonnement  $\gamma$  de 450 keV provenant de <sup>7</sup>Be.

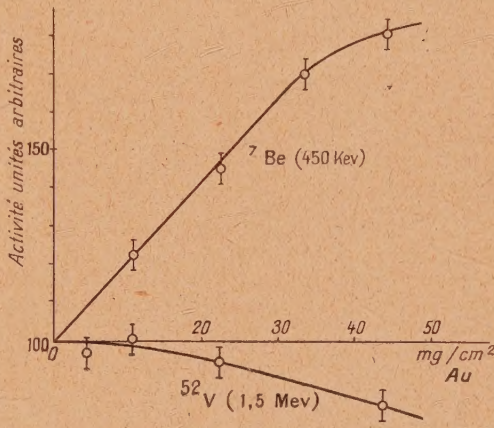


Fig. 7. — Effet de transition Al — Au.

La courbe (fig. 7) obtenue avec <sup>52</sup>V indique qu'il n'y a pas de rayonnement  $\gamma$  mou ou du moins, s'il existe, que, son intensité est inférieure à 10 pour 100 de celle du rayonnement principal. Ce qui confirme notre première conclusion.

IV. — Discussion des résultats expérimentaux.

Nous avons résumé dans le Tableau III les résultats expérimentaux que nous possédons sur <sup>52</sup>V. Le rayonnement électronique ne peut être formé de positons; Yuasa observe en effet, dans la chambre Wilson, des positons, mais la proportion du nombre de positons par rapport au nombre de négatons observés est très inférieure à celle observée dans nos expériences : quelques unités pour 100 contre environ 25 pour 100; en outre, les expériences effectuées à l'aide de la chambre d'ionisation à Argon, en vue de détecter un rayonnement d'annihilation, ont été négatives.



TABLEAU III.

Rayonnement.	Énergie (en MeV).	Intensité.	Auteurs.	Observations.
$\beta$ .....	$2,7 \pm 0,1$	-	T. Yuasa	Spectre continu simple, Wilson
$\gamma$ .....	$1,5 \pm 0,07$	-	T. Yuasa-Martelly	Wilson : paires, absorption
Électronique.....	$\sim 0,25$	25 pour 100 du spectre $\beta$	Bouchéz et Renard	Probablement C. i., absorption
$\gamma$ mou.....	$\sim 0,25$	Très faible	id.	Très converti, non observé
		$\frac{I_\gamma}{I_{\beta \text{ total}}} = 0,65 \pm 0,1$		

Nous devons également éliminer l'hypothèse d'un spectre  $\beta$  complexe; elle est incompatible avec les résultats de T. Yuasa, et, d'autre part, le rapport des coïncidences  $\beta$ - $\gamma$  au nombre des  $\beta$  détectés, en fonction de l'épaisseur d'écran d'Al traversé, devrait varier, or il est constant dans nos expériences.

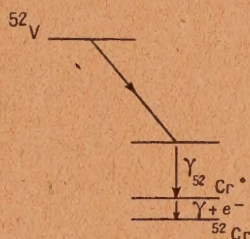


Schéma 1.

On est ainsi conduit à admettre que ce groupe électronique est formé d'électrons de conversion interne produits par un rayonnement  $\gamma$  mou fortement converti.

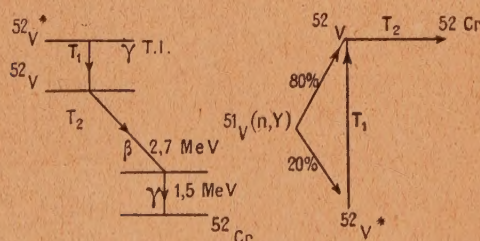


Schéma 2.

Ce rayonnement pourrait provenir d'un état métastable du  $^{52}\text{Cr}$  (schéma 1). Le nombre de rayons  $\beta$  ou de rayons  $\gamma$  de 1,5 MeV devrait être inférieur ou au plus égal au nombre de rayons  $\gamma$  mous et d'électrons de conversion, ce qui est infirmé par nos expériences. Il ne reste plus que l'hypothèse d'un état isomérique de  $^{52}\text{V}$ .

### Étude de la transition isomérique du $^{52}\text{V}$ .

Soient  $T_1$  et  $T_2$  les périodes de la transition isomérique et de la désintégration  $\beta$   $^{52}\text{V} \rightarrow ^{52}\text{Cr}$ .

$N_{10}$  et  $N_{20}$  les nombres de noyaux  $^{52}\text{V}^*$  et  $^{52}\text{V}$  présents au temps  $t = 0$ , fin de l'irradiation.

$N_1$  et  $N_2$  les nombres de noyaux  $^{52}\text{V}^*$  et  $^{52}\text{V}$  présents au temps  $t$  après la fin de l'irradiation.

$\rho$  et  $1 - \rho$  la proportion des noyaux  $^{52}\text{V}^*$  et  $^{52}\text{V}$  formés à partir de  $^{51}\text{V}$  par la réaction  $^{51}\text{V}(n, \gamma)$ .

Les expériences ont montré que le rapport  $r$  des intensités observées avec des compteurs, d'une part, à paroi mince ( $\sim 20 \mu$ ) et, d'autre part, à paroi de  $3/10^6$  de millimètre d'épaisseur (arrêtant le groupe d'électrons mous) était sensiblement constant au cours de la décroissance et égal à 1,25. Les mesures ont été effectuées du temps  $t = 1$  mn au temps  $t = 20$  mn après la fin de l'irradiation (au bout de 20 mn l'activité, 100 à 200 c : mn, n'était plus assez intense pour continuer des mesures précises, erreur relative 10 p. 100 environ). Le compteur à paroi mince utilisé ne permettait pas des mesures d'une précision supérieure à 10 p. 100.

$$r = \frac{\Delta N_{e-} + \Delta N_{\beta}}{\Delta N_{\beta}} = 1 + \frac{\Delta N_{e-}}{\Delta N_{\beta}} = 1,25 \pm 0,15$$

avec  $\Delta N_{e-}$ ,  $\Delta N_{\beta}$ , nombre d'électrons mous, de rayons  $\beta$  émis par la source pendant le temps  $\Delta t$ , rapporté à un même angle solide (compte tenu de la fraction des intensités absorbées dans les compteurs à paroi mince ou à paroi épaisse).

On peut alors écrire :

$$N_{10} = \frac{K\rho}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 \theta}), \quad (1)$$

$$N_{20} = \frac{K\rho}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 \theta} - e^{-\lambda_2 \theta}) + \frac{K(1-\rho)}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 \theta}), \quad (2)$$

$$\frac{\Delta N_{\beta}}{\Delta N_{e-}} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \frac{N_{20}}{N_{10}} e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} + \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left( \frac{\lambda_1}{\lambda_2} - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} \right) \quad (3)$$

dans lesquelles  $K$  est une constante de proportionnalité dépendant du nombre de noyaux  $^{51}\text{V}$ , de la section efficace de la réaction  $^{51}\text{V}(n, \gamma)$ .

$\theta$  durée de l'irradiation,  $\theta = 10$  mn dans toutes nos expériences.



Premier cas. —  $T_1 < T_2$ .

Ce cas ne peut être retenu parce que, d'une part, les électrons mous n'accompagneraient pas les négatons pendant toute la durée de la décroissance, d'autre part,  $R = \frac{\Delta N_\beta}{\Delta N_e}$  varierait très sensiblement.

Deuxième cas. —  $T_1 > T_2$ .

La période 3,8 mn serait celle de la transition isomérique. Les résultats expérimentaux indiquent alors que l'on a déjà sensiblement atteint l'équilibre de régime au temps  $t = 1$  mn.

A l'équilibre de régime (3) devient

$$\frac{\Delta N_\beta}{\Delta N_e} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} = 4, \quad \text{d'où } T_2 \cong 3 \text{ mn.}$$

En supposant  $T_2 = 3$  mn et en tenant compte de (1) et (2) on a :

Au temps  $t = 1$  mn,

$$R_1 = \left( \frac{\Delta N_\beta}{\Delta N_e} \right)_{t=1} \cong \frac{0,9}{\rho} + 0,03.$$

Au temps  $t = 20$  mn,

$$R_{20} \cong \frac{0,4}{\rho} + 2,6,$$

et  $r_1$  et  $r_{20}$  sont sensiblement égaux à 1,25 pour  $\rho \cong \frac{1}{5}$ .

L'équilibre de régime est donc sensiblement atteint au temps  $t = 1$  si l'on suppose que la proportion des noyaux  $^{52}\text{V}$  et  $^{52}\text{V}^*$  formés au cours de l'irradiation à partir de la réaction  $^{51}\text{V}(n, \gamma)$  est voisine de  $\frac{1}{4}$ .

Remarquons que  $\frac{N_{20}}{N_{10}}$  varie très peu avec la durée d'irradiation  $\theta$ . Il en est de même de  $R$  (nous n'avons pas vérifié ce résultat expérimentalement, toutes nos expériences ayant été effectuées avec  $\theta = 10$  mn).

Troisième cas. —  $T_1 \cong T_2$ ,  $\lambda_1 \cong \lambda_2 = \lambda$ .

S'il en est ainsi (1), (2) et (3) deviennent

$$N_{10} = \frac{K\rho}{\lambda} (1 - e^{-\lambda\theta}), \quad (1')$$

$$N_{20} = \frac{K(1-\rho)}{\lambda} (1 - e^{-\lambda\theta}) + K\rho\theta e^{-\lambda\theta}, \quad (2')$$

$$R = \frac{N_{20}}{N_{10}} + \lambda t. \quad (3')$$

On en déduit que  $\frac{\Delta R}{R}$  varie de 10 pour 100 environ de  $t = 1$  mn à  $t = 20$  mn.

En résumé on est donc conduit à admettre que la période de la transition isomérique du  $^{52}\text{V}$  est 3,8 mn. La période de la transition  $^{52}\text{V} \rightarrow ^{52}\text{Cr}$  serait soit  $(3 + 0,4)$  mn, soit voisine de celle de la transition isomérique elle-même; la période apparente étant toujours 3,8 mn (schéma 2).

Indiquons que d'après la théorie de la conversion interne, à l'aide de la formule non relativiste de Dancoff et Morrison [12], une transition dont l'énergie est environ 250 keV et le coefficient de conversion interne  $\frac{N_e}{N_e + N_\gamma} \cong 1$  ( $N_e$  et  $N_\gamma$  étant les nombres d'électrons et de photons provenant de la transition pendant l'unité de temps), peut émettre un rayonnement  $\gamma$  2 $^\circ$  polaire électrique.

La période de la transition isomérique serait dans ce cas de l'ordre de  $10^2$  s, ce qui est comparable à la période du  $^{52}\text{V}$ .

## VI. — Conclusions.

La radioactivité du  $^{52}\text{V}$  a été étudiée : nous avons mis en évidence un groupe d'électrons mous. Ces électrons ne sont pas couplés aux rayons  $\beta$ . Un schéma de transition a été proposé pour interpréter l'origine de ces électrons : transition isomérique du  $^{52}\text{V}$  dont la période serait voisine de 3,8 mn. Le rayonnement  $\gamma$  de cette transition aurait une énergie de 250 keV environ et serait presque entièrement ou totalement converti.

Nous avons aussi déterminé le rapport des nombres absolus de photons  $N_\gamma$  et d'électrons  $N_e$  émis au cours de la désintégration; la valeur de ce rapport a été trouvée égale à  $0,65 \pm 0,1$ .

En supposant le spectre  $\beta$  simple et en tenant compte des électrons mous observés, ce rapport devient (Tableau I, hypothèse 2) :

$$\frac{N_\gamma}{N_\beta} = 0,8 \pm 0,15.$$

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Chimie Nucléaire du Collège de France. Nous tenons à exprimer notre gratitude au Professeur F. Joliot qui nous a suggéré ce travail et nous a aidés de ses précieux conseils au cours de l'exécution.

Nous remercions vivement le Professeur I. Curie pour l'intérêt bienveillant qu'elle a accordé à cette étude.

Manuscrit reçu le 10 octobre 1947.

## BIBLIOGRAPHIE.

- [1] E. AMALDI, O. D'AGOSTINO, E. FERMI, B. PONTECORVO, F. RASETTI et E. SEGRE, *Proc. Roy. Soc.*, 1935, A **149**, p. 522.
- [2] H. WATKINS, *Phys. Rev.*, 1937, **52**, p. 777.
- [3] T. YUASA, *Thèse Paris*, 1944.
- [4] J. MARTELLY, *Thèse Paris*, 1945.
- [5] P. SABEL, *Cahiers de Phys.*, 1944, **19**, p. 39.

- [6] J. V. DUNWORTH, *Rev. Soc. Instr.*, 1940, **11**, p. 167.
- [7] F. NÖRLING, *Ark. Mat. Astr. Fys.*, 1941, **27** A, p. 1.
- [8] G. A. RENARD, *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1946, **223**, p. 945.
- [9] A. BERTHELOT, *Thèse Paris*, 1943.
- [10] A. BERTHELOT, *J. Phys. Rad.*, juillet 1946.
- [11] N. MARTY, *J. Phys. Rad.*, 1944, **7**, p. 276.
- [12] DANCOFF et MORISSON, *Phys. Rev.*, 1939, **55**, p. 122.



# ANALYSE DES QUANTITÉS DE RADIUM ET DE RADIOTHORIUM PRÉSENTES DANS UNE SOURCE DE MÉSOTHORIUM SANS TRAITEMENT CHIMIQUE

PAR CHARLES-P. VICTOR.

Attaché de recherches à l'Institut du Radium.

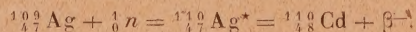
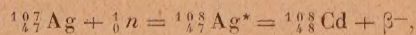
**Sommaire.** — Détermination des quantités de radium et de radiothorium contenues dans un mélange de mésothorium et radium. Nous indiquons les résultats obtenus avec notre dispositif expérimental. Nous donnons enfin quelques indications montrant la possibilité de perfectionnement de la méthode.

Les rayons gamma les plus énergiques du radium et du radiothorium donnent naissance à des neutrons par réaction nucléaire sur le glucinium et le deutérium. La grande différence de rendement de ces réactions, principalement entre les effets du radium et du radiothorium sur le deutérium, permet de réaliser l'analyse des quantités de radium et de radiothorium présentes dans un mélange [1] de mésothorium, radium.

Ce sont les rayons gamma de 2,62 MeV du thorium C'' qui produisent la plus grande quantité de photoneutrons dans le deutérium, ceux de 2,193 MeV du radium C en produisant une quantité infime. Le mésothorium II émet aussi des rayons gamma, mais d'énergie très inférieure au seuil du glucinium et du deutérium et de ce fait ils ne donnent naissance à des photoneutrons ni dans l'un, ni dans l'autre.

Pour mesurer les quantités de radium et de radiothorium il suffira donc de compter les photoneutrons obtenus dans le glucinium et dans le deutérium avec le mélange inconnu de radium, mésothorium et de comparer leur nombre à celui obtenu avec des sources connues de radium et de radiothorium.

Pour déterminer le nombre de ces neutrons nous les avons ralentis à l'aide de paraffine, et les avons utilisés pour activer de l'argent qui devient alors émetteur de rayons  $\beta$ , ainsi que le montrent les deux réactions nucléaires suivantes :



Les radioargents ainsi obtenus ont des périodes de 2,3 mn et 225 jours pour l'isotope 107 et 22 s pour l'isotope 109.

Nous verrons plus loin que pour les durées d'irradiation et de mesure choisies, ce sont les périodes de 2,3 mn et 22 s qui seront les plus favorables.

Nous avons effectué la numération des rayons  $\beta$  à l'aide d'un compteur  $\beta$  de Geiger-Müller à paroi d'aluminium de 0,1 mm d'épaisseur et ayant un diamètre de 1,8 cm.

**Dispositif expérimental d'irradiation.** — Il est constitué par trois blocs de paraffine de 4 cm d'épaisseur sur 18 × 27 cm, possédant des évidements pour la mise en place de la source et de la cible et une fente pour y glisser le détecteur.

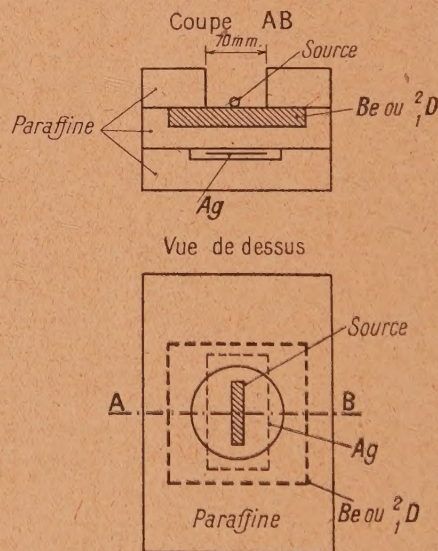


Fig. 1.

Nous nous sommes servis d'une plaque de glucinium de 15 cm de côté et 2 cm d'épaisseur. Le deutérium était sous forme d'eau lourde contenue dans un récipient circulaire, plat, de 15 cm de diamètre et 2 cm d'épaisseur intérieure.

Quant au détecteur, en plus des avantages présentés par les périodes de l'argent, il faut ajouter les facilités de manipulation qu'il présentait. Après expériences, nous avons adopté, pour obtenir le meilleur rendement, des lames de 9,5 centièmes de millimètre d'épaisseur, faisant 9 × 5 cm.



**Dispositif expérimental de mesures.** — Le compteur C était contenu dans un double cylindre (I, II) de fer tel que le montre la figure ci-contre; le cylindre intérieur (I) pouvant facilement

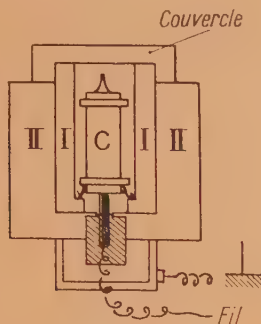


Fig. 3.

sortir. Le choix de ce dispositif nous a permis d'utiliser la plus grande surface possible des feuilles d'argent. En effet, à l'irradiation, ces feuilles étaient placées à plat contre la paraffine, présentant une grande surface aux photoneutrons et était ensuite roulée dans le cylindre (I) qui était placé autour du compteur pour les mesures. On avait ainsi la possibilité d'utiliser au maximum la surface du glucinium ou de l'eau lourde, tout en restant dans les meilleures conditions d'utilisation du compteur.

En augmentant ainsi le nombre de coups minute mesuré nous avons accru la précision des résultats.

**Mesures.** — Dans l'ordre, les opérations consistaient à irradier l'argent durant un temps  $T$ , puis à mesurer cette activité durant un temps  $T'$ ; l'intervalle de temps  $t$  entre la fin de l'irradiation et le début de la mesure ayant une grande importance. En effet, ce temps  $t$  étant de 30 s, le radioargent de 22 s, ajoute son émission au début de la mesure à celui de 2,3 mn qui est le plus important, les temps  $T$  et  $T'$  ayant été choisis de 5 mn.

Dans ces conditions, nous avons obtenu pour l'étalonnage les résultats suivants avec des sources étalons de 100 mg de radium et de 8,18 mg équiv. de radiothorium.

TABLEAU I.

Sources.	Cibles.	Nombre de coups par minute.
Ra	Be.....	1400
100 mg équ.	$\frac{2}{3}$ D.....	60
Rdth	Be.....	660
100 mg équ.	$\frac{2}{3}$ D.....	1430

Le mouvement propre durant les mesures varia de 35 à 40 coups minute environ. Il est retranché de tous les résultats donnés dans le texte.

A partir de ces chiffres on peut donc calculer les quantités de radium ( $x$ ) et de radiothorium ( $y$ ) contenues dans une source de mésothorium + radium d'intensité  $I$  (toutes valeurs données en milligramme équivalent de Ra et mesurées au grand condensateur du Service de mesures de l'Institut du Radium [2]).

Soit  $a$  le nombre de coups donnés par la source inconnue en utilisant le glucinium comme cible et  $b$  en utilisant le deutérium.

On a

$$a = \frac{1400x}{100} + \frac{660y}{100},$$

$$b = \frac{1430y}{100} + \frac{60x}{100}.$$

D'où le système

$$140x + 66y = 10a,$$

$$6x + 143y = 10b.$$

Dont les solutions sont :

$$x = \frac{1430a - 660b}{19624} \neq \frac{143a - 66b}{1960},$$

$$y = \frac{1400b - 60a}{19624} \neq \frac{140b - 6a}{1960}$$

et si  $z$  est la quantité de mésothorium pur

$$z = I - (x + y).$$

**Vérification expérimentale.** — Nous avons alors mesuré un mélange de mésothorium + radium préparé au laboratoire. Son intensité  $I$ , mesurée au grand condensateur [2] était le jour des mesures de 24,2 mg équivalents.

On trouve

$$a = 228, \quad b = 90,$$

ce qui donne

$$x = 13,5 \text{ mg équ.}$$

$$y = 5,7 \quad \text{»}$$

$$z = 5 \quad \text{»}$$

Cette source n'avait plus été traitée depuis avril 1929, dernière date à laquelle le radiothorium avait été extrait, l'équilibre radioactif était réalisé entre le radiothorium et le mésothorium. Donc sachant qu'en :

Février 1944 : l'intensité de la source était de 28 mg.

Décembre 1946 : elle était de 24,2 mg équivalents.

Dans les mêmes conditions de mesure que ci-dessus [2], la décroissance observée étant relative au Msth + Rdth, connaissant la période du Msth (6,7 ans), nous avons pu calculer la quantité de Msth + dérivés et par suite celle du Ra. Enfin sachant que

$$1 \text{ mg équ. Ra} \rightarrow 1,5 \text{ mc de Msth I et II [3]}$$

$$1 \quad \text{»} \quad \rightarrow 1,09 \text{ mc de Rdth [4]}$$



et ceci dans les conditions de mesures au grand condensateur, nous pouvons calculer les quantités de Msth pur et de Rdth.

On trouve

$$Ra = 14 \text{ mg}$$

$$Rdth = 6,7 \text{ »}$$

$$Msth = 3,5 \text{ »}$$

Calculons succinctement l'erreur sur les résultats expérimentaux en prenant comme erreur de comptage la plus probable  $dn = \sqrt{n}$  ( $n$  étant le nombre de coups minute mesuré au compteur).

Nous trouvons alors dans le cas qui nous intéresse

$$x = 13,5 \pm 1,$$

$$y = 5,7 \pm 0,8,$$

$$z = 5 \pm 1,8.$$

**Possibilités de perfectionnement.** — Toutes les mesures ci-dessus ayant été faites avec des sources sous forme de tube, nous avons voulu

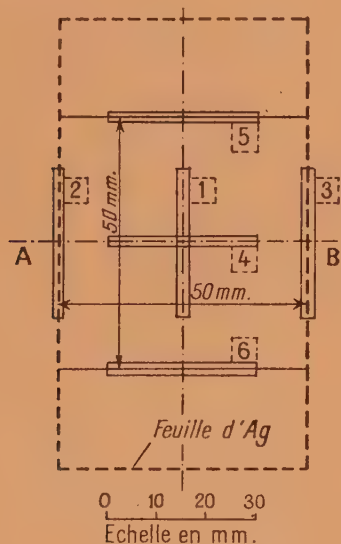


Fig. 3.

déterminer les fluctuations de résultats qui pourraient se produire si l'on avait affaire à des sources occupant une certaine surface et une certaine hauteur ; soit, par exemple, un produit contenu dans un cristallisateur.

Dans ce but nous avons étudié l'influence du déplacement de la source de radium sur le glucinium à la fois dans le plan et verticalement.

**1° Déplacement dans le plan.** — Nous avons déplacé le tube sur une surface limitée par un carré de 5 cm de côté. Il a occupé successivement les positions marquées ci-contre, l'argent occupant le

rectangle en pointillés et étant roulé autour du compteur selon l'axe AB.

La position [1] correspond à la position normale utilisée durant les mesures antérieures.

TABLEAU II.

Position.	Nombre de coups par minute.	Position.	Nombre de coups par minute.
1.....	1400	4.....	1360
2.....	1258	5.....	1242
3.....	1274	6.....	1251

**2° Déplacement vertical.** — Nous avons éloigné la source de millimètre en millimètre jusqu'à 5 mm au-dessus de la position normale.

On a

TABLEAU III.

Hauteur.	Nombre de coups par minute.	Hauteur.	Nombre de coups par minute.
0.....	1400	3.....	1175
1.....	1358	4.....	1100
2.....	1236	5.....	1067

Ceci nous montre que si la source occupait une certaine hauteur il faudrait, pour que l'étalonnage soit plus en rapport avec les conditions de mesure, placer les sources de référence à une hauteur égale à environ la moitié de la hauteur totale occupée par le produit à mesurer.

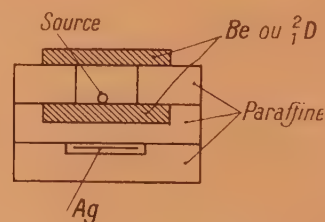


Fig. 4.

D'autre part nous avons constaté expérimentalement que ces variations de résultats en fonction des déplacements horizontaux et verticaux de la source peuvent être réduits à une valeur négligeable en plaçant, selon le cas, une plaque de glucinium ou un récipient d'eau lourde sur la source comme le montre la figure ci-contre.

D'après ces mesures nous pouvons affirmer que si les radioéléments étaient contenus dans un cristallisateur on pourrait faire les mesures dans les mêmes conditions que précédemment, en ajoutant simplement la plaque de glucinium ou le bidon d'eau lourde supérieur et en réalisant un nouvel



étalonnage. Malgré tout, ceci n'est vrai que pour une source occupant au maximum un cylindre de 3 cm de diamètre et 5 mm de hauteur.

Enfin, dans tous les cas, il est certain que la précision pourra encore être augmentée d'une façon très appréciable en utilisant un étalon de radiothorium de l'ordre de 100 mg et un détecteur de

période plus longue que l'argent afin de réduire l'erreur provenant de l'évaluation du temps de comptage et d'irradiation.

Je tiens à remercier M<sup>me</sup> Joliot-Curie pour l'intérêt qu'elle a bien voulu porter à ce travail et les nombreux conseils qu'elle m'a donnés.

Manuscrit reçu le 29 juillet 1947.

#### BIBLIOGRAPHIE.

[1] HALBAN, C. R. Acad. Sc., 1930, **206**, p. 1170.

[2] M<sup>me</sup> M. CURIE, J. de Physique, 1912, **2**, p. 795.

[3] M<sup>me</sup> JOLIOT-CURIE, Les radioéléments naturels, p. 144.

[4] M. RICOUX, J. de Physique, 1937, **8**, p. 388.

### CALCUL DES OBSERVATIONS DE GRANDES GERBES

Par J. DAUDIN.

Laboratoire de l'École Normale supérieure.

**Sommaire.** — De nouvelles expériences avec de nouveaux appareils à compteurs ont été poursuivies par MM. Maze et Fréon sur la suggestion du Professeur P. Auger. Ces expériences ont amené l'auteur à étendre à de nouveaux montages les calculs dérivés de la loi de fréquence et déjà publiés dans un précédent article de ce journal (réf. Auger et Daudin). En même temps la marche des calculs est présentée de façon plus générale ainsi que les résultats et plusieurs applications nouvelles, satisfaisantes, en sont données.

**1. Introduction.** — Diverses expériences (cf. Daudin et Loverdo) ont permis d'établir que la fréquence des gerbes d'Auger tombant sur une surface d'observation déterminée avec une densité moyenne de trajectoires comprise entre  $\delta$  et  $\delta + d\delta$ , est de la forme

$$N(\delta) d\delta = N_0 \delta^{-1-\gamma} d\delta, \quad (1)$$

où  $\gamma$  est l'indice intégral, variable avec l'altitude et peut être avec d'autres facteurs,  $N_0$  un paramètre variable avec l'altitude et l'amplitude des gerbes.

Si les trajectoires sont indépendantes, ce qui est à peu près vrai pourvu que les distances mutuelles des compteurs soient du même ordre de grandeur et qu'aucun écran gerbigène ne fausse la répartition au hasard, la probabilité pour qu'un compteur de surface  $S$  soit touché est, d'après Poisson

$$1 - e^{-S\delta}.$$

La fréquence avec laquelle  $p$  compteurs de surface  $s_1, s_2, s_p$  seraient touchés par l'ensemble des

gerbes de densité comprise entre zéro et l'infini est

$$P_p = N_0 \int_0^\infty \delta^{-1-\gamma} \prod_{i=1}^{i=p} (1 - e^{-s_i \delta}) d\delta.$$

S'il y a  $q$  compteurs en anticoincidence de surface  $s'_1, s'_j, s'_q$ , il faut multiplier sous l'intégrale par

$$\prod_{j=1}^{j=q} e^{-s'_j \delta} = e^{-\sum s'_j \delta}.$$

Posons  $\sum s'_j = \sigma$ , surface totale des compteurs en anticoincidence

$$P_{p-q} = N_0 \int_0^\infty \delta^{-1-\gamma} \prod_{i=1}^{i=p} (1 - e^{-s_i \delta}) e^{-\sigma \delta} d\delta. \quad (2)$$

Telle est la fréquence avec laquelle un système de  $p$  compteurs  $s_i$  sera touché par des gerbes qui n'actionnent pas  $q$  autres compteurs de surface totale  $\sigma$ .



**2. Observations préliminaires.** — Cette formule n'est valable que dans les conditions énumérées ci-dessus : envergure totale du système de compteurs déterminée, distance entre les compteurs du même ordre de grandeur, altitude déterminée, pas de toit notable.

En outre la formule (1) nous indique que le nombre total de gerbes devrait être infini comme l'intégrale. Ce résultat étant absurde,  $\gamma$  ne saurait être constant et doit devenir plus petit que zéro vers les très faibles densités. Mais la figure 1 de l'article d'Auger et Daudin montre que les coïncidences n'intéressent qu'une bande étroite de densités allant de 1000 à 1 ou de 100 à 1 ou même moins. Il suffit que  $\gamma$  varie peu dans un tel intervalle.

Serrons de plus près les limites dans lesquelles (2) a un sens. Pour que l'intégrale soit finie pour la limite supérieure  $\delta \rightarrow \infty$ , il suffit que  $\sigma \neq 0$  ou si  $\sigma = 0$  que  $\gamma > 0$ .

Pour que l'intégrale soit finie pour la limite inférieure  $\delta \rightarrow 0$ , comme  $1 - e^{-s\delta} \rightarrow s\delta$ , le produit tend vers  $\Pi s_i \delta^p$ , l'intégrale tend vers

$$\int \delta^{-1-\gamma} \delta^p \Pi s_i d\delta.$$

Ceci a un sens pourvu que  $p - 1 - \gamma > -1$  ou encore  $p > \gamma$ . Donc, deux conditions

$$\text{I. } \sigma \neq 0, \quad \text{ou } \sigma = 0, \quad \gamma > 0; \quad \text{II. } p > \gamma.$$

Dans les expériences  $\gamma$  est compris entre 1 et 2 voisin de 1,5 : l'intégrale a donc un sens pourvu qu'on enregistre des coïncidences au moins doubles. Dans des conditions où  $\gamma$  serait supérieur à 2, les gerbes ne seraient enregistrables qu'en coïncidences au moins triples. C'est ce qui se produit probablement aux fortes densités.

**3. Intégration.** — Le principe nous en a été indiqué par le Dr E. Schatzmann de l'Institut d'Astrophysique.

Il suffit d'intégrer deux fois par parties pour  $1 < \gamma < 2$

$$\begin{aligned} P_{p-q} = N_0 & \left[ -\frac{\delta^{-\gamma}}{\gamma} \Pi_1 e^{-\sigma\delta} \right] \\ & + N_0 \left[ \frac{\delta^{1-\gamma}}{\gamma(\gamma-1)} \frac{d}{d\delta} (\Pi_0 e^{-\sigma\delta}) \right] \\ & + \frac{N_0}{\gamma(\gamma-1)} \int \delta^{1-\gamma} \frac{d^2}{d\delta^2} (\Pi_0 e^{-\sigma\delta}) d\delta. \end{aligned}$$

Les deux premiers crochets sont nuls aux deux limites si les conditions I et II sont remplies. Examinons l'intégrale restante. Développons le produit  $\Pi$  et multiplions par  $e^{-\sigma\delta}$ , on aura un polynôme d'exponentielles dont chaque terme sera de la forme  $A_l \cdot e^{-(s_l + \sigma)\delta}$ , où  $s_l$  est une somme d'un certain nombre de surfaces  $s_i$  et  $A_l$  le coefficient de l'exponentielle d'exposant  $s_l + \sigma$ .

La dérivée seconde de chaque terme est

$$\begin{aligned} A_l (s_l + \sigma)^2 e^{-(s_l + \sigma)\delta}, \\ P_{p-q} = \frac{N_0}{\gamma(\gamma-1)} \sum A_l (s_l + \sigma)^2 \int_0^\infty \delta^{1-\gamma} e^{-(s_l + \sigma)\delta} d\delta, \\ = \frac{N_0}{\gamma(\gamma-1)} \sum A_l (s_l + \sigma)^\gamma \\ \times \int_0^\infty ((s_l + \sigma)\delta)^{1-\gamma} e^{-\gamma(s_l + \sigma)\delta} d(s_l + \sigma)\delta. \end{aligned}$$

Si  $\gamma < 2$  l'intégrale a un sens, c'est factorielle  $1 - \gamma$

$$P_{p-q} = N_0 \frac{(1-\gamma)!}{\gamma(\gamma-1)} \sum A_l (s_l + \sigma)^\gamma. \quad (3)$$

**Exemples d'application.** — a. Soit à calculer les coïncidences doubles entre deux compteurs de surface  $s$  et  $S$  sans anticoïncidences  $\sigma = 0$ . Le produit  $\Pi$  est

$$(1 - e^{-s\delta})(1 - e^{-S\delta}) = 1 - e^{-s\delta} - e^{-S\delta} + e^{-(s+S)\delta}.$$

Les exposants  $s_l$  sont  $s$ ,  $S$  et  $S + s$ , les coefficients  $A_l$  sont  $-1$ ,  $-1$  et  $+1$

$$P_2 = N_0 \frac{(1-\gamma)!}{\gamma(\gamma-1)} (-s^\gamma - S^\gamma + (s+S)^\gamma). \quad (4)$$

b. Soit à calculer les coïncidences  $p^{\text{ièmes}}$  entre  $p$  compteurs identiques  $s$ ;  $q$  compteurs identiques étant en anticoïncidences  $\sigma = q \cdot s$ ;  $s_l$  est  $i \cdot s$  ( $i$  allant de 1 à  $p$ ) —  $A_l$  est  $(-1)^i \cdot C_p^i$

$$P_{p-q} = N_0 \frac{(1-\gamma)!}{\gamma(\gamma-1)} s^\gamma \sum_{i=1}^{p-1} (-1)^i C_p^i (q+i)^\gamma. \quad (5)$$

**4. Premières conséquences.** — Si les surfaces de tous les compteurs sont multipliées par un facteur commun  $\lambda$ , chaque terme  $(s_l + \sigma)$  est multiplié par  $\lambda$  et le nombre des coïncidences par  $\lambda^\gamma$ . Résultat connu.

Si en coïncidences doubles, les surfaces des deux compteurs sont très différentes, par exemple si  $s \ll S$ , on peut remplacer

$$\begin{aligned} (s + S)^\gamma &= S^\gamma \left( 1 + \frac{s}{S} \right)^\gamma \\ &= S^\gamma \left( 1 + \frac{\gamma s}{S} + \frac{\gamma(\gamma-1)}{2} \frac{s^2}{S^2} + \dots \right). \end{aligned}$$

Au premier ordre près, le nombre des coïncidences  $P_2$  varie comme

$$P_2 \sim N_0 \frac{(1-\gamma)!}{\gamma(\gamma-1)} s^\gamma S^{\gamma-1}. \quad (4')$$

Si l'un des compteurs est très grand, le nombre des coïncidences doubles varie comme la surface du grand compteur à la puissance  $(\gamma - 1)$ , environ comme la racine carrée de la surface.

Par exemple, le dispositif des gerbes de mésons de Janossy est actionné par une particule gerbigène très rare, il est équivalent à un compteur unique de



très petite surface et le nombre des gerbes de mésons associées à la coïncidence d'un compteur éloigné variera comme la racine carrée de la surface de ce compteur (1).

**5. Nombre de trajectoires sur une surface déterminée.** — Le nombre de trajectoires qui traversent une chambre de Wilson commandée par un système de compteurs, est une grandeur intéressante.

*a. Nombre moyen.* — Pour une gerbe de densité  $\delta$ , le nombre moyen de trajectoires sur la surface  $S$  est  $S\delta$ .

Pour l'ensemble des gerbes, c'est la valeur moyenne de  $S\delta$ .

$$\overline{N_{p-q}} = \frac{S}{P_{p-q}} \int \delta^{-\gamma} \Pi(\gamma) e^{-\sigma\delta} d\delta.$$

Cette intégrale n'a de sens que si dans la condition I, on remplace  $\gamma > 0$  par  $\gamma > 1$ . Pour intégrer le numérateur, il suffit d'une seule intégration par parties et donc d'une dérivation. On remplacera donc  $\gamma$  par  $\gamma - 1$

$$\overline{N_{p-q}} = S\gamma \frac{\Sigma A_l(s_l + \sigma)^{\gamma-1}}{\Sigma A_l(s_l + \sigma)^\gamma}. \quad (6)$$

*b. Fréquence du passage de  $\nu$  trajectoires sur la surface  $S$ .* — Pour la gerbe de densité  $\delta$ , cette fréquence est donnée par la formule de Poisson

$$\frac{e^{-S\delta} (S\delta)^\nu}{\nu!}.$$

C'est la valeur moyenne de cette probabilité qui donne la fréquence de passage de  $\nu$  trajectoires pour toutes les gerbes

$$P_{p-q}^\nu = \frac{S^\nu}{\nu!} \frac{1}{P_{p-q}} \int_0^\infty \delta^\nu e^{-S\delta} \delta^{1-\gamma} \Pi(\gamma) e^{-\sigma\delta} d\delta.$$

Il faut évidemment remplacer  $\sigma$  par  $S + \sigma$  et  $\gamma$  par  $\gamma - \nu$  moyennant quoi, on trouvera aisément si  $\nu > 1$

$$P_{p-q}^\nu = \frac{S^\nu}{\nu!} \left[ \frac{\gamma(\gamma-1)}{(1-\gamma)!} (\nu-\gamma-1)! \right] \frac{\Sigma A_l(s_l + S + \sigma)^{\gamma-\nu}}{\Sigma A_l(s_l + \sigma)^\gamma}.$$

On peut remplacer le facteur entre crochets  $\prod_{i=\nu-1}^{\nu-1} (i-\gamma)$ , formule valable aussi pour  $\nu = 0$  et  $\nu = 1$ .

Ce sont, sous une autre forme, les résultats indiqués au paragraphe 13, formules (8) et (9) par Auger et Daudin, sauf erreur d'impression (dans  $k^\nu$  remplacer  $S^\gamma$  par  $S^\nu$ ).

(1) Note sur épreuve : l'auteur remercie M. Janossy qui lui a communiqué la copie d'un article aux *Proceedings of the Royal Society*, avant sa parution. Dans ce travail des calculs analogues sont développés mais en vue d'applications généralement différentes.

**6. Coïncidences en combinaison.** — Pour accroître la souplesse des systèmes de compteurs, on est de plus en plus amené à enregistrer des coïncidences d'ordre inférieur au nombre de compteurs utilisés, en signalant quels sont les compteurs touchés à chaque coïncidence (Regener, Rogozinsky et Auger, etc.), par exemple, par des lampes néon.

Par exemple, à l'École Normale supérieure-Maze et Fréon ont construit un appareil qui enregistre toutes les coïncidences au moins triples entre neuf compteurs et permet de lire le nombre et la position des compteurs touchés.

Ceci pose un nouvel objet au calcul : calculer les coïncidences au moins  $p^{\text{ièmes}}$  entre  $r$  compteurs identiques de surface  $s$ .

On ne saurait partir du nombre de coïncidences  $p^{\text{ièmes}}$  entre  $p$  compteurs et multiplier par le nombre de combinaisons de  $r$  compteurs  $p$  à  $p$  car les coïncidences touchant plus de  $p$  compteurs intéressent plusieurs combinaisons de  $p$  compteurs : pour additionner des probabilités, il faut que les cas s'excluent les uns les autres.

En revanche, les coïncidences  $p^{\text{ièmes}}$  ne touchant aucun autre compteur (anticoïncidences des  $r-p$  autres compteurs) s'excluent les unes les autres et s'ajoutant toutes, donnent le nombre de coïncidences d'ordre  $p$  entre les  $r$  compteurs, ce qu'on écrira

$$\mathcal{N}_r^p = C_r^p P_{p-q} \quad \text{où} \quad r-p=q.$$

On pourra de même calculer les coïncidences d'ordre  $p+1, \dots$ , jusqu'à  $r$  et en ajoutant connaître le nombre total de coïncidences d'ordre égal ou supérieur à  $p$  (par exemple, les coïncidences entre trois compteurs au moins), ce qu'on écrira

$$\mathcal{N}_r^{\geq p} = \mathcal{N}_r^p + \mathcal{N}_r^{p+1} + \dots + \mathcal{N}_r^j + \dots + \mathcal{N}_r^r.$$

D'après (5) le nombre  $\mathcal{N}_r^p$  de coïncidences  $p^{\text{ièmes}}$  prises entre  $r$  compteurs

$$\left. \begin{aligned} \mathcal{N}_r^p &= ks^\gamma C_r^p \sum_{i=1}^{i=p} (-1)^i C_p^i (r-p+i)^\gamma, \\ \text{où} \quad k &= \lambda_0 \frac{(1-\gamma)!}{\gamma(\gamma-1)}. \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

On peut par un calcul assez complexe, trouver une formule générale relativement simple pour les coïncidences d'ordre égal ou supérieur à  $p$

$$\begin{aligned} \mathcal{N}_r^{\geq p} &= \mathcal{N}_r^p + \dots + \mathcal{N}_r^j + \dots + \mathcal{N}_r^r \\ &= ks^\gamma \sum_{j=p}^j C_r^j \sum_{i=1}^i (-1)^i C_j^i (r-j+i)^\gamma. \end{aligned}$$

Donnons seulement le résultat

$$\mathcal{N}_r^{\geq p} = ks^\gamma C_r^p \sum_{u=1}^{u=p} (-1)^u C_p^u \{ (r-p+u)^\gamma - 1 \}. \quad (9)$$



L'on peut, enfin, calculer la fréquence relative avec laquelle un compteur déterminé est touché dans un tel montage actionné par les coïncidences  $p^{\text{ièmes}}$  entre  $r$  compteurs. La fréquence avec laquelle un compteur déterminé parmi les  $r$ , n'est pas touché est

$$Q_{r-1}^p = ks\gamma \left[ 1 + p C_{p-1}^u \sum_{u=1}^{u=p} (-1)^u C_{p-1}^{u-1} \frac{(r-p+u)\gamma}{r-1-p+u} \right].$$

**7. Applications numériques.** — Appliquons les formules indiquées à des compteurs identiques.

Coïncidences doubles entre 2 compteurs [formule (5)  $q = \sigma$  ou (8)  $r = p = 2$ ]

$$P_2 = ks\gamma(2\gamma - 2).$$

Coïncidences triples entre 3 compteurs [formule (5)  $p = 3$ ,  $q = \sigma$  ou (8)  $r = p = 3$ ]

$$P_3 = ks\gamma(3\gamma - 3.2\gamma + 3).$$

Coïncidences quadruples entre 4 compteurs [formule (5)  $p = 4$ ,  $q = \sigma$  ou (8)  $r = p = 4$ ]

$$P_4 = ks\gamma(4\gamma - 4.3\gamma + 6.2\gamma - 4).$$

Coïncidences au moins triples entre 9 compteurs [formule (8)  $r = 9$ ,  $p = 3$ ]

$$\mathcal{N}_{\geq 3}^9 = ks\gamma 252(-9\gamma^{-1} + 2.8\gamma^{-1} - 7\gamma^{-1}).$$

Voici un tableau numérique pour différentes valeurs de  $\gamma$  :

Rapports exprimés en pourcentage		$\gamma$			Observation niveau de la mer
		1,65	1,5	1,33	
Rapport	Triples	25,3	35	44,9	$\sim 25$
	Doubles				
"	Quadruples	58,9	64,2	69,5	$\sim 60$
	Triples				
Accroissement du nombre de coïncidences triples lorsqu'on utilise 9 compteurs au lieu de 3.....					
	Quadruples	12,05	9,7	7,55	$11,6 + 1,7$
	Triples	39,8	44,8	50,3	$\frac{113}{283} = 40$
	Quintuples	51,3	54,9	59,6	$\frac{59}{113} = 52$
	Quadruples				
	Sextuples	28,6	33	38	$\frac{31}{113} = 28$
Expériences avec 9 compteurs	Quadruples				
	Septuples	17,2	20,5	25	$\frac{11}{113} = 10$
	Quadruples				
	Octuples	9,8	12,45	16,1	$\frac{5}{113} = 5$
	Quadruples				
	Nonuples	5	6,7	9,27	$\frac{2}{113} = 2$
	Quadruples				
N.-B. — Il s'agit partout dans ce tableau de coïncidences au moins doubles, au moins triples, etc.					

Enfin, la fréquence relative avec laquelle un compteur est touché est :

$$42,5 \text{ pour } 100, \quad 44,6 \text{ pour } 100, \quad 47,2 \text{ pour } 100 \\ \text{contre } 40 \text{ pour } 100 \text{ observé.}$$

On voit qu'au niveau de la mer, pour des envergures de quelques mètres, l'indice  $\gamma$  est très vraisemblablement voisin de 1,65.

En altitude  $\gamma$  doit diminuer (confirmé par le travail de Maze et Fréon) : donc, l'accroissement des coïncidences dépend légèrement du montage, les coïncidences doubles augmentant moins vite que les triples, les coïncidences entre gros compteurs augmentant moins vite que les coïncidences entre

petits compteurs. Le calcul montre que les coïncidences au moins triples entre neuf compteurs enregistrées par l'appareil Maze-Fréon doivent croître à peu près comme les doubles dont la croissance a été observée par le groupe d'Auger. En combinant avec les résultats de Hilberry, on prévoit que les coïncidences observées par Fréon et Maze doivent être multipliées environ par 10 à 3000 m et par 35 vers 5300 m, soit 10 : h au niveau de la mer, 100 : h à 3000 et 350 : h vers 5300 m.

On voit quel intérêt présentent ces calculs pour la prévision des expériences de grande gerbe.

## 8. Sensibilité de divers montages à l'efficacité



**d'un ou plusieurs compteurs.** — On sait (voir Daudin, *Ann. de Phys.*, 1945, 20, p. 563) que l'on peut représenter l'absorption des rayons de gerbe par un écran, comme une simple diminution de l'efficacité, c'est-à-dire de la surface du compteur protégé. De même, au moins qualitativement, si l'on rapproche deux compteurs on augmente le nombre des coïncidences et l'efficacité des compteurs ou, si l'on veut, leur surface efficace (effet de corrélation dans l'espace).

L'effet de ces variations de surface est très différent suivant le montage des compteurs. Supposons pour simplifier que deux compteurs de surface  $s$  subissent une petite variation identique de surface égale à  $\Delta s$ . Plaçons-les d'abord en coïncidences doubles. Il est évident d'après le paragraphe 7 que la variation relative des coïncidences sera

$$\frac{\Delta P_2}{P_2} = \gamma \frac{\Delta s}{s}.$$

Associons un troisième compteur de même surface  $s$  mais fixe. Un calcul élémentaire montre que la même variation  $\Delta s$  des deux premiers compteurs entraînera une variation des triples

$$\frac{\Delta T}{T} = 2\gamma s \frac{\Delta s}{s} \frac{-1 + 2.2\gamma - 3\gamma^{-1}}{-3 + 3.2\gamma - 3\gamma} \neq \frac{\Delta s}{s} \quad \text{si } \gamma = 1,5.$$

Associons maintenant à ces trois compteurs un quatrième de grande surface  $S$  en *anticoïncidence*. Un calcul d'approximation montre que le nombre de ces triples non quadruples est de la forme  $A.s^2.s.S\gamma^{-3}$  et que la variation relative est donc  $2\frac{\Delta s}{s}$  (deux des trois petits compteurs seuls varient).

Les trois montages conduisent donc à des variations relatives allant du simple au double. En général on peut dire que les petits effets sont noyés dans les montages exigeant de fortes densités parce que les gerbes très denses satureront les compteurs. Ils sont au contraire exagérés si l'on exclut les gerbes denses par quelque système d'anticoïncidence. Ceci est le développement de l'observation originale de Maze; lorsque parmi les neuf compteurs on en considère deux de plus en plus écartés, la décohérence est très accentuée sur les coïncidences triples non quadruples (anticoïncidences des six autres compteurs). D'après ce qui précède l'effet de la décohérence doit même être supérieur à celui qu'on obtiendrait en observant les coïncidences doubles entre deux compteurs de plus en plus écartés comme l'ont fait autrefois Auger, Maze et Robley.

Dernière observation : Autrefois Auger et Daudin essayèrent de déceler les condensations locales en coïncidences triples en rapprochant deux compteurs sur trois, ils pensaient faire de ce système rapproché un sélecteur de condensations locales. La chambre de Wilson montra par la suite qu'il n'en était rien. Ce qui précède en fournit l'explication : loin d'accentuer l'effet des condensations locales, ce montage les défavorisait en les noyant dans les gerbes de grande densité. Il aurait fallu ajouter un quatrième compteur, de grande surface, en anticoïncidence <sup>(2)</sup>.

(<sup>2</sup>) Note : a plus forte raison les essais tentés en coïncidences quadruples pour étudier la décohérence en écartant deux compteurs sont-ils peu adaptés. Ceci explique peut être l'échec d'une récente expérience de Cocconi.

Manuscrit reçu le 20 octobre 1947.

#### BIBLIOGRAPHIE.

JANOSSY, *Communication au Congrès de Cracovie*.  
COCCONI, LOVERDO et TONGIORGI, *Phys. Rev.*, 1946, **70**, 841 et suivantes.  
DAUDIN et LOVERDO, *Journ. de Phys. Rad.*, 1947, **8**, 233.

AUGER, EHRENFEST, MAZE, et FRÉON, *J. de Phys. et Rad.*, 1939, p. 39.  
AUGER et DAUDIN, *J. de Phys. Rad.*, 1945, **6**, 302.  
DAUDIN, *Ann. de Physique*, 1945, **20**, 563.



## SUR UN SILICATE DE CADMIUM LUMINESCENT

Par A. LEVIALDI et V. LUZZATI.

**Sommaire.** — Étude de quelques propriétés d'un silicate de cadmium <sup>(1)</sup> luminescent. Leur interprétation par la théorie des trappes électroniques : profondeur extraordinaire des niveaux métastables présents. Enregistrement des courbes d'excitation dans différentes conditions. Considérations théoriques.

**Introduction.** — Si l'on illumine un échantillon de silicate de cadmium par des radiations ultraviolettes de longueur d'onde voisine de  $\lambda = 2537 \text{ \AA}$ , il se produit une émission de lumière visible, dont le spectre est bien défini <sup>(2)</sup>. De ce fait nous pouvons classer notre substance parmi les solides luminescents ou « phosphores » suivant la désignation habituelle. Tous les « phosphores » possèdent en outre une importante propriété dont nous allons nous occuper dans ce travail : l'inertie optique.

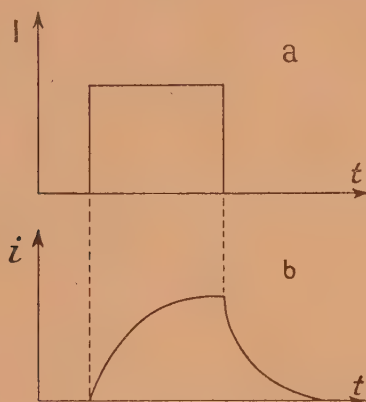
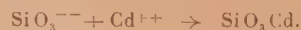


Fig. 1.

Toute substance luminescente, excitée par un faisceau atteignant instantanément à partir de zéro son intensité maxima, émet ses radiations suivant une loi croissante avec le temps et il faut attendre un certain temps avant que le maximum soit atteint. D'une façon tout à fait analogue, quand on

<sup>(1)</sup> Le silicate de cadmium ( $\text{SiO}_3\text{Cd}$ ) que nous avons étudié fut préparé par M. Luciano Pérez de la manière suivante : On mélange une solution de 15,1 g de  $\text{SiO}_3\text{Na}_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dans de l'eau distillée avec une solution de 13,45 g de  $\text{SO}_3\text{Cd} \cdot \frac{8}{3}\text{H}_2\text{O}$ . On a alors la réaction suivante :



Le silicate qui précipite, est lavé sur filtre jusqu'à absence de réaction par  $\text{SO}_4\text{Ba}$  (0,5 N) ; on lui ajoute 0,522 g

coupe l'excitation, l'émission du « phosphore » décroît graduellement jusqu'à l'extinction. La figure 1 montre schématiquement l'allure du phénomène.

a. Représente l'intensité  $I$  du faisceau exciteur en fonction du temps ;

b. L'émission  $i$  du « phosphoré » en fonction du temps.

Il est important d'observer que les surfaces limitées par des courbes du type 1a et 1b représentent des énergies à condition que  $I$  et  $i$  soient représentés à des échelles convenables.

On obtient expérimentalement ces courbes en utilisant des phosphoroscopes et des fluoroscopes. Dans ce travail, nous décrirons un dispositif de ce genre que nous avons utilisé pour tracer nos courbes. Le silicate de cadmium, excité après un traitement thermique approprié, montre une inertie optique beaucoup plus grande que pendant les excitations suivantes. Ce phénomène, commun à un très grand nombre de « phosphores », se rencontre dans le silicate que nous avons étudié avec une telle intensité qu'il est possible de l'observer à l'œil nu. Le but de ce travail a été d'enregistrer la différence entre la première courbe d'excitation et les suivantes pour des traitements thermiques différents et dans des conditions différentes, et d'essayer d'interpréter les résultats à la lumière des théories actuellement admises.

**Observations préliminaires.** — Généralement, on étudie les courbes d'excitation et d'extinction en utilisant des dispositifs qui permettent d'enre-

de  $(\text{NO}_3)_2\text{Mn}$  dissous dans de l'eau distillée, ce qui correspond à 1 g de Mn métallique pour 100 g de silicate.

On sèche au four, on le pulvérise dans un mortier de porcelaine et on le calcine à  $1050^\circ \text{C}$  pendant 15 mn. On le laisse refroidir dans le four, on le broie à nouveau dans un mortier de porcelaine en évitant les coups de pilon pour ne pas détruire les propriétés luminescentes du silicate et l'on répète le même traitement thermique.

<sup>(2)</sup> C. R. FONDA, *J. Phys. Chem.*, 1939, **43**, p. 561.



gistrer des phénomènes réitérés, l'observation d'une seule courbe à la fois n'étant pas possible. Dans quelques travaux néanmoins, on peut trouver la reproduction de courbes enregistrées pendant une seule excitation [*cf.* en particulier Randall, Wilkins, Garlick (4)]. Notre attention a été attirée de la façon suivante sur la propriété en question du silicate de cadmium; à la sortie du four, après avoir comme d'habitude, pris un échantillon du produit, l'avoir laissé refroidir et l'avoir porté dans un faisceau de rayons ultraviolets, nous avons remarqué, en le remuant avec une spatule, que celle-ci laissait derrière elle une traînée sombre; en écartant les grains superficiels déjà excités, la couche inférieure encore vierge, était exposée à la radiation ultraviolette et n'atteignait son maximum d'émission qu'avec une inertie relativement grande (3). Pour confirmer la différence entre la première excitation et les suivantes, nous avons déposé une couche de « phosphore » sur une plaque de verre, et après avoir caché la moitié de notre couche par une autre plaque de verre, nous avons exposé la partie non protégée aux radiations ultraviolettes, pendant quelques secondes. Nous avons ensuite éteint la source excitatrice, et laissé le « phosphore » s'éteindre complètement. Puis nous avons enlevé l'écran et exposé la couche tout entière aux radiations ultraviolettes; il nous fut possible ainsi d'observer deux zones (qui étaient limitées par le bord de l'écran), dont l'émission était très différente au commencement et dont la différence disparaissait en quelques secondes dans les conditions de notre expérience.

Sur des plaques recouvertes par notre silicate de cadmium, dont une partie avait été exposée aux radiations ultraviolettes, il nous fut aisé d'observer après plusieurs semaines une différence remarquable entre les courbes d'excitation, qu'un traitement thermique jusqu'à 280°C ne pouvait supprimer.

Tous les phénomènes que nous venons de décrire nous firent croire qu'il pouvait s'agir d'une modification photochimique irréversible, puisque notre « phosphore » excité montrait une extraordinaire stabilité. Ce fut seulement en observant que des traitements thermiques beaucoup plus énergiques diminuaient notablement la différence entre « phosphore » vierge et « phosphore » excité que nous fûmes amenés à penser qu'il devait s'agir d'un phénomène thermoluminescent, ou tout au moins où la thermoluminescence devait jouer un rôle très important. Une autre raison pour soutenir ce point de vue nous fut fournie par l'identité des zones spectrales

actives dans la première excitation du silicate de cadmium et dans les excitations suivantes (*voir plus loin*).

**Dispositif expérimental utilisé.** — La lumière d'une lampe à mercure tombe sur le « phosphore » qui éclaire à son tour une photocellule. Celle-ci est branchée directement sur un galvanomètre à aimant mobile. Le déplacement du spot s'enregistre photographiquement sur un tambour. Les courbes d'excitation s'obtiennent en retirant brusquement un écran de verre qui interrompt le faisceau ultraviolet excitateur.

Notre photocellule était une Photronic Weston.

Avant d'utiliser cette cellule nous avons déterminé la constance de sa résistance intérieure, la linéarité de la réponse et tout spécialement son inertie. En effet, le courant produit par la cellule, dès qu'elle est illuminée par un faisceau atteignant instantanément sa valeur la plus élevée, ne croît pas avec la même vitesse, mais s'approche asymptotiquement du maximum; en outre, pour des variations égales d'éclairement, l'inertie de la réponse est d'autant plus faible que l'éclairement d'où l'on est parti est plus élevé. La figure 6 (4) représente l'inertie de la cellule dans les conditions de nos expériences. Nous avons tenu compte de cette inertie dans la discussion des oscillogrammes afin de pouvoir utiliser la première partie des courbes.

Le galvanomètre employé en guise d'oscillographe a une période  $T = 1,8$  seg. Le plus grand avantage du galvanomètre à aimant mobile est d'avoir une période d'oscillation et un amortissement indépendants, entre de larges limites, soit de la résistance externe, soit de l'intensité du courant. Ces conditions que nous avons pu vérifier expérimentalement, nous ont permis d'analyser les oscillogrammes en les considérant comme des courbes sinusoïdales amorties.

Notre source de radiations ultraviolettes était constituée par un tube « Germicide » General Electric alimenté en courant continu stabilisé à 1 pour 100 (15 W 220 V). Afin d'éliminer la diffusion de l'ultraviolet et de concentrer l'énergie, nous avons recouvert la face extérieure du tube par du vernis à l'aluminium, laissant une petite fenêtre sans peinture; nous avons obtenu ainsi un intégrateur grossier.

## RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

**a. Émission en fonction de l'intensité de l'excitation et de l'angle d'incidence.** — Les valeurs indiquées dans le tableau correspondent à différentes distances entre source ultraviolette et « phosphore ». Elles sont obtenues en plaçant devant

(3) La figure 3 (1) représente une courbe de première excitation, tandis que la figure 6 (1) représente une courbe de deuxième excitation.

(4) J. T. RANDALL, M. H. F. WILKINS, G. F. J. GARLICK, *Proc. Roy. Soc. (A)*, novembre 1945.



la cellule une plaque de verre recouverte par du silicate de cadmium, et en déterminant la déviation du galvanomètre ainsi obtenue; la valeur de l'émission du « phosphore » ( $I_{\text{émis}}$ ) est obtenue en retranchant de cette valeur la déviation due à l'émission visible résiduelle de la source ultraviolette. La valeur de l'intensité de l'émission visible résiduelle de la source ultraviolette ( $I_{\text{u.v.}}$ ) est obtenue en remplaçant le verre recouvert de « phosphore » par un verre dépoli. D'autre part le rapport entre les émissions visibles et ultraviolettes étant constant dans les conditions d'alimentation de notre source, cette dernière mesure nous permet de déterminer l'intensité de l'ultraviolet (dans une échelle arbitraire, différente de  $I_{\text{émis}}$ ).

TABLEAU I.

Distance (en cm).	Silicate de cadmium.			Willémite.		
	$I_{\text{émis}}$	$I_{\text{u.v.}}$	$\frac{1}{2,09} \frac{I_{\text{émis}}}{I_{\text{u.v.}}}$	$I_{\text{émis}}$	$I_{\text{u.v.}}$	$\frac{1}{1,97} \frac{I_{\text{émis}}}{I_{\text{u.v.}}}$
1,3...	63,9	30,53	1	63,3	39,2	1
2,6...	34,9	17,44	0,957	35,4	18,6	0,970
3,9...	20,6	10,84	0,909	21,4	11,8	0,918
5,2...	13,4	7,17	0,895	14,33	7,95	0,913
6,5...	9,2	5,04	0,875	10,05	5,67	0,898
7,7...	6,8	3,74	0,870	7,4	4,18	0,898
10,2...	4,0	2,21	0,865	4,43	2,56	0,878
12,8...	2,6	1,48	0,842	2,9	1,73	0,852
15,3...	1,8	1,02	0,837	2,05	1,23	0,847
17,9...	1,3	0,74	0,842	1,54	0,93	0,843
20,4...	1,0	0,56	0,842	1,12	0,7	0,837

Les valeurs qui figurent dans le Tableau I présentent une allure tout à fait inattendue; on constate en effet une augmentation apparente du rendement lumineux  $I_{\text{émis}}$  du « phosphore » au fur et à mesure que  $I_{\text{u.v.}}$  augmente, ce qui produit un effet opposé à celui qui dériverait d'une saturation. Nous avons pu observer un phénomène tout à fait analogue dans un échantillon de Willémite; les valeurs observées sont reproduites dans le Tableau I.

En vue d'expliquer ce phénomène, nous avons effectué l'expérience suivante : nous avons déterminé, de la même façon que ci-dessus, les valeurs des intensités de l'émission ( $I_{\text{émis}}$ ) et de l'ultraviolet ( $I_{\text{u.v.}}$ ) en faisant varier l'angle d'incidence du faisceau excitateur pour une distance donnée entre source et « phosphore ». Nous avons réuni dans le Tableau II, les valeurs observées; elles montrent une augmentation apparente du rendement à mesure que l'angle d'incidence augmente. Pour la Willémite nous avons obtenu le même résultat.

On peut en donner l'explication suivante :

le  $I_{\text{u.v.}}$  n'est pas totalement absorbé par la couche de « phosphore »; une fraction  $kI_{\text{u.v.}}$  passe à travers le « phosphore »; plus la couche est mince, plus cette fraction est grande. Dans notre cas il est évident qu'à un angle d'incidence croissant correspond un parcours croissant du faisceau excitateur dans le « phosphore » et, par conséquent, une meilleure utilisation des radiations ultraviolettes. Ce raisonnement explique bien les résultats du Tableau II.

TABLEAU II.

Angle d'incidence (°).	$I_{\text{u.v.}}$	Silicate de cadmium.		Willémite.	
		$I_{\text{émis}}$	$2,29 \frac{I_{\text{émis}}}{I_{\text{u.v.}}}$	$I_{\text{émis}}$	$0,67 \frac{I_{\text{émis}}}{I_{\text{u.v.}}}$
0.....	14,63	6,4	1	21,9	1
22.....	12,6	6,1	1,11	19,9	1,06
32.....	10,4	5,4	1,19	17,9	1,15
42.....	8,4	4,8	1,31	15,2	1,21

Pour interpréter les résultats du Tableau I, il faut rappeler que la source ultraviolette et la surface du « phosphore » sont relativement étendues (à peu près 15 cm<sup>2</sup> chacune), donc que les rayons tombant sur le « phosphore » ne sont pas rigoureusement normaux à sa surface, surtout pour les petites distances. De ce fait la variation apparente du rendement lumineux (qui augmente en réduisant la distance) peut être interprétée comme provenant de l'obliquité des rayons ultraviolets qui traversent le « phosphore »; en allongeant le parcours des rayons dans le « phosphore », la probabilité pour que les centres soient excités se trouve augmentée. Cette interprétation a néanmoins une valeur assez limitée du fait qu'il s'agit de poudres microcristallines où des phénomènes de réflexion et diffusion très compliqués sont toujours présents.

**b. Courbes d'excitation du « phosphore » vierge par des faisceaux ultraviolets de différentes intensités.** — Chaque courbe a été obtenue avec une couche de « phosphore » vierge (c'est-à-dire un « phosphore » qui n'a pas encore reçu de radiations ultraviolettes après avoir été sorti du four) et en disposant la source à une distance donnée du « phosphore ». Les courbes enregistrées sont représentées par la figure 2 à une échelle telle que tous les  $y_0$  coïncident.

Nous allons exposer maintenant une importante propriété commune à cette famille de courbes que nous utiliserons dans la dernière partie de cette note.

Si nous désignons par  $y_i = y_i(t)$  une fonction représentant la courbe  $i$  de la famille, il se trouve que pour un couple quelconque de courbes  $y_i, y_j$ ,



la relation

$$y_i(t) = y_{\infty}(k_{ih}t), \quad (1)$$

où  $k_{ih}$  est un paramètre constant pour chaque couple de courbes, se vérifie assez bien.

Cette propriété a été vérifiée par des calculs graphiques et numériques et nous ne prétendons pas lui donner un domaine d'application s'étendant plus loin que les valeurs expérimentales.

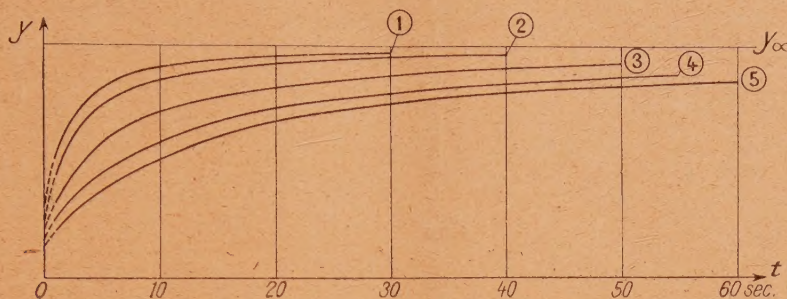


Fig. 2.

Le tableau suivant fournit un résumé des caractéristiques les plus intéressantes de ces courbes, ainsi que les conditions dans lesquelles elles ont été obtenues.

TABLEAU III.

Numéro de la courbe.	Distance entre u. v. et « phosphore » (cm.).	$I_{u.v.}$ (unités arbitraires).	$K_{ih} = \frac{I_{u.v.}(i)}{I_{u.v.}(i-1)}$	$k_{ih}$ de la relation (1).
1.....	4,2	10		
2.....	6,7	4,9	2,04	1,4 à 1,6
3.....	10,5	2,1	2,3	2,3 2,5
4.....	15,6	0,84	2,5	1,8 1,7
5.....	19,4	0,63	1,33	1,5 1,3

Les courbes représentées ont été reproduites plusieurs fois avec une précision minima de 2 pour 100. En général, néanmoins, la précision a été beaucoup plus grande.

Au début, pendant un intervalle de 1,5 s, où intervient l'inertie mécanique du galvanomètre, les courbes n'ont aucune valeur.

Chaque courbe a été tracée avec une couche de phosphore neuve et il n'a pas été possible d'obtenir des couches égales et uniformes. En outre, les valeurs de  $I_{u.v.}$  du tableau n'ont pas été mesurées directement; leur imprécision peut être par conséquent assez grande en raison des variations possibles de l'alimentation de la source ultraviolette.

**c. Courbes d'excitation après un traitement thermique.** — Avant d'enregistrer une courbe d'excitation quelconque nous avons effectué les

opérations suivantes : nous avons excité notre « phosphore » jusqu'à la saturation. Nous avons ensuite mis le « phosphore » dans un four maintenu à une température constante pendant un temps défini et, après l'avoir sorti du four nous l'avons laissé se refroidir jusqu'à la température de la pièce. Le « phosphore » ainsi traité a été alors exposé de nouveau devant la source ultraviolette en le maintenant à une température déterminée. La courbe d'excitation a été enregistrée dans ces conditions.

Plusieurs courbes ainsi obtenues sont représentées dans la figure 3 a.

Sur les courbes (fig. 3 b), tracées dans le système  $\log(y_{\infty} - y); t$ , on peut remarquer quelques propriétés importantes. Observons avant tout que la première partie des courbes s'éloigne beaucoup de la loi exponentielle, loi que nos courbes suivent assez bien pour des temps plus longs. De plus, la différence entre les ordonnées d'un couple quelconque de courbes est constante, avec la précision à laquelle nous pouvons nous attendre. Cette propriété peut s'exprimer ainsi :

$$f_i(t) = k_{ih}f_h(t), \quad \text{où } f_i(t) = y_{\infty} - y_i(t) \quad (2)$$

et  $k_{ih}$  est constant pour tout couple de courbes  $i, h$ .

Nous reviendrons plus loin sur cette propriété.

Cette famille de courbes est à même de nous donner des renseignements importants, car elle nous permet de connaître l'ordre de grandeur de la profondeur des trappes électroniques de notre silicate de cadmium par une interprétation immédiate. Pour cela nous devons anticiper sur les résultats d'une discussion que l'on trouvera plus loin, et dont la conclusion est la suivante : la surface limitée par les courbes  $y_i(t)$  et l'asymptote  $y_{\infty}$  représente l'énergie accumulée par le « phosphore » pendant l'excitation d'indice  $i$ , si l'on suppose



constant le coefficient d'absorption (voir plus loin). Puisque la courbe de deuxième excitation du « phosphore », excité au préalable jusqu'à saturation, atteint sa plus haute valeur  $y_{\infty}$  en un temps quasi nul [voir l'observation complémentaire (1)], la

surface en question représente l'énergie lumineuse nécessaire pour saturer le « phosphore » après le traitement thermique correspondant. Cette énergie est celle que le « phosphore » libère pendant ce même traitement thermique.

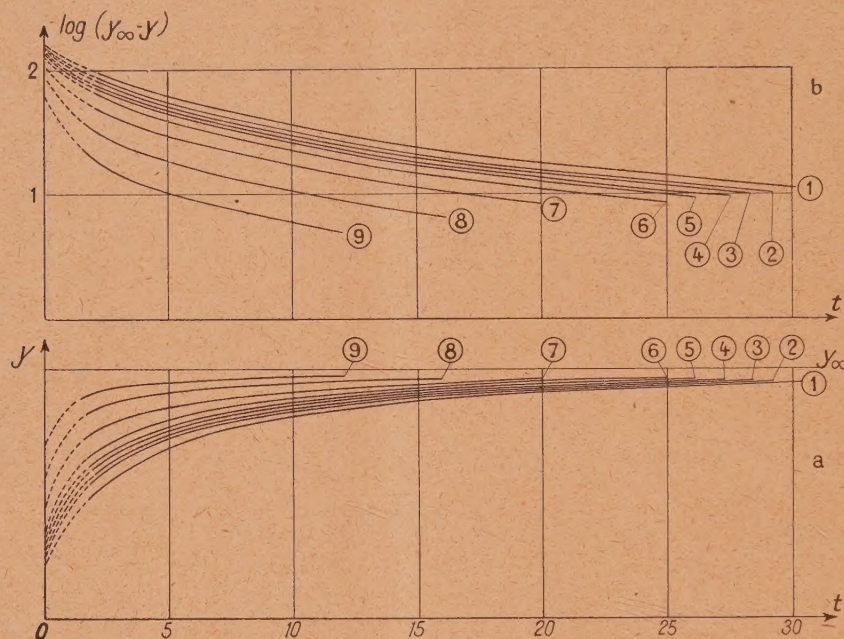


Fig. 3.

Si nous admettons l'existence d'une proportionnalité entre énergie libérée et nombre de trappes vides (voir plus loin), il nous est possible d'obtenir une loi de probabilité de sortie des électrons des des trappes en fonction des températures de traitement thermique.

TABLEAU IV.

( $\Delta n$  = nombre d'électrons libérés).

Numéro de la courbe.	Traitement thermique.	$k_{ih}$ relation (2).	$E_i$ (surface).	$E_i - E_{i+1} = \Delta n_i$
1.....	Phosph. vierge	1	1	0,13
2.....	10 mn à 450°C	0,87	0,87	0,04
3.....	» 400	0,83	0,83	0,06
4.....	» 350	0,77	0,77	0,04
5.....	» 300	0,73	0,73	0,09
6.....	» 250	0,64	0,64	0,13
7.....	» 200	0,51	0,51	0,18
8.....	» 150	0,33	0,33	0,15
9.....	» 100	0,177	0,177	»

sement du nombre d'électrons libérés en 10 mn en fonction de la température. On peut supposer en outre que ces électrons sont libérés par des

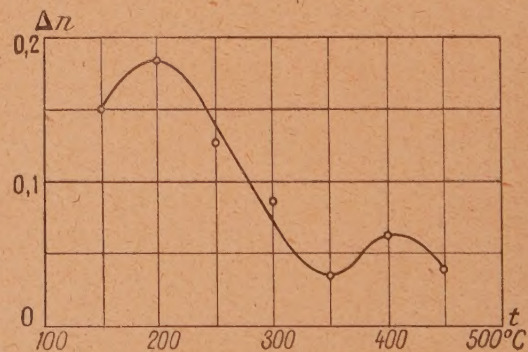


Fig. 4.

trappes qui, à cette température possèdent une vie moyenne  $\tau$  égale au temps du chauffage. Ceci est d'autant plus vrai que la différence entre températures correspondant à deux chauffages voisins, devient plus petite.

La libération se produit suivant une loi assez irrégulière, témoignant une distribution compliquée

La figure 4 représente la variation de l'accrois-



des trappes en fonction de leur profondeur. La figure montre bien ce que nous venons de dire.

Une analyse soigneuse des courbes correspondant à des intervalles de temps moins éloignés les uns des autres permettrait d'obtenir une loi de distribution sans devoir faire appel aux courbes de « glow » (4).

On évite ainsi une difficulté très sérieuse; la mesure de la probabilité de sortie des trappes par l'émission lumineuse aux hautes températures. En effet, dans ces conditions, la probabilité pour qu'un électron passe avec émission de lumière d'une trappe à son état fondamental vers un centre luminescent, varie pendant l'expérience (5).

Cette variation de la probabilité a été observée dans un travail récent (6) sur le Ca Sr S—Bi. Si l'on sature les trappes existant dans cette substance en l'excitant, l'énergie lumineuse émise sous l'influence des radiations infrarouges est beaucoup

plus élevée que celle qui apparaît dans la courbe de « glow ».

Afin de donner l'ordre de grandeur de la profondeur des trappes de notre silicate de cadmium, observons les courbes de la figure 3 a. A 400° C il existe sûrement des trappes dont le  $\tau$  est de l'ordre de 10 mn. De la relation [Randall (4)]

$$\tau = \frac{1}{s} e^{\frac{w}{kT}}, \quad s \cong 10^8 \pm 1,$$

nous pouvons déduire

$$w = kT \log \tau s$$
$$w = 1,44 \pm 0,13 \text{ eV.}$$

**d. Courbes obtenues par excitation entrecoupée.** — Le « phosphore », excité jusqu'à la saturation, a été soumis à un traitement thermique défini, puis à nouveau excité pendant un temps  $\Delta t$  et, après un intervalle de temps donné, excité à nouveau. On enregistre alors sa courbe.

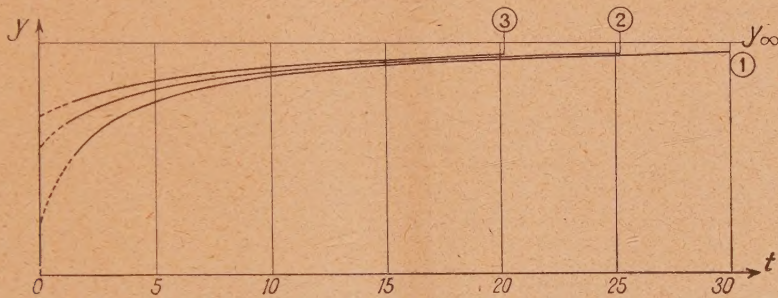


Fig. 5.

Les trois courbes de la figure ont été enregistrées en utilisant un échantillon de phosphore préalablement chauffé à 400° C pendant 10 mn. La courbe notée (1) a été obtenue sans interruption, la courbe (2) correspond à une excitation préalable de 1,7 s et à un intervalle de 6 s; la troisième (3) correspond à une excitation préalable de 3,4 s et à un intervalle de 6 s. Nous avons ensuite enregistré une courbe obtenue après une excitation préalable de 1,7 s et un intervalle d'interruption de 330 s; le résultat est identique à la courbe (2).

Toutes ces courbes présentent la propriété suivante :

$$f_i(t) = f_h(t + \Delta t_{ih}), \quad (3)$$

où  $\Delta t_{ih}$  est une constante pour  $i, h$ , égale à la différence de durée entre les excitations préalables. En d'autres termes, toute courbe enregistrée après une excitation préalable  $\Delta t$  peut être amenée à

coïncider avec la courbe obtenue sans excitation préalable, par un déplacement égal à  $\Delta t$ .

Nous reviendrons plus loin sur cette propriété.

**e. Observations complémentaires.** — 1° *Courbe de deuxième excitation.* — Nous avons enregistré la courbe de deuxième excitation (fig. 6) (1) après avoir excité notre « phosphore » et l'avoir laissé s'éteindre. Nous pouvons observer que, dans ce cas, l'émission atteint le 95 pour 100 du maximum presque instantanément (à notre échelle). Nous devons ajouter que la forme de cette courbe est influencée par la durée du temps écoulé entre son enregistrement et sa première excitation.

2° *Courbe de deuxième excitation après un intervalle de temps très long entre première et deuxième excitation.* — La figure 6 (2) représente la courbe de deuxième excitation obtenue sur un échantillon, qui, après avoir été excité, était resté 110 h à 15° C.

Nous pouvons observer que l'énergie accumulée pendant ce processus est grande et que, par conséquent, le nombre des trappes libérées est assez élevé.

(5) N. F. MOTT et R. W. GURNEY, *Electronic processes in ionic crystals* (Oxford Univ. Press., 1940).

(6) R. T. ELLICKSON, *J. Opt. Soc. Amer.*, 1946, **36**, p. 264.



3° *Courbe d'extinction.* — L'extinction s'effectue presque instantanément (fig. 6 (3)). Le petit résidu de phosphorescence est à peine supérieur à la sensibilité de l'appareil. Cette phosphorescence

entraîne la diminution du nombre des trappes occupées à la température de la pièce et le changement de forme de la deuxième courbe d'excitation après un long intervalle de temps (voir plus haut).

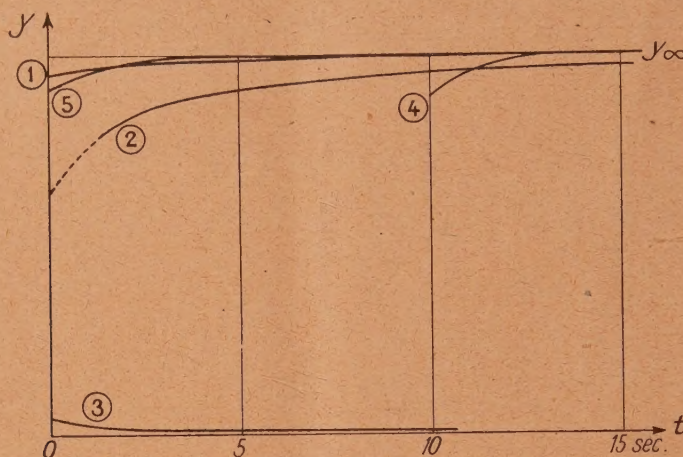


Fig. 6.

4° *Saturation par des intensités différentes.* — Nous avons effectué une expérience analogue à celle que nous venons de décrire en saturant notre « phosphore » par deux faisceaux de l'ultraviolet dont le rapport d'intensité était de  $1/20^e$ . Après deux traitements thermiques identiques nous avons enregistré les deux courbes. Ayant obtenu deux courbes identiques pour deux intensités si différentes nous devons admettre l'identité des états de saturation dans les deux cas (c'est-à-dire l'identité du nombre des trappes saturées).

5° *Première excitation d'un silicate de cadmium préparé ailleurs* (fig. 6) (5). — Pour déterminer l'influence de la préparation sur le nombre et la distribution des trappes, nous avons enregistré la courbe de première excitation d'un échantillon de silicate de cadmium commercial vierge (provenant de U. S. A.) qui montra, quoique à une échelle beaucoup plus petite que notre « phosphore », une inertie nettement supérieure à celle qui correspond à une deuxième excitation.

6° *Identité des zones spectrales d'excitation et d'activation.* — Cette expérience a été réalisée en supposant que la différence entre la première courbe d'excitation et les suivantes était due à une transformation photochimique du « phosphore », produite par les radiations ultraviolettes. Nous avons donc essayé de déterminer le seuil spectral de la réaction

en procédant de la façon suivante : une plaque de verre recouverte de « phosphore » vierge a été mise à la place de la plaque photographique dans un spectrographe Hilger en quartz. Nous avons ensuite fait tomber sur le « phosphore » le spectre d'un arc de fer pendant 2 h et nous avons déterminé les zones d'émission du « phosphore » que nous appellerons « spectre 1 ».

Après avoir enlevé la plaque du spectrographe, nous l'avons soumise à une excitation ultraviolette uniforme; nous avons ainsi pu observer une émission intense aux endroits correspondant aux raies du fer sur un fond sombre disparaissant peu à peu jusqu'à ce que toute la plaque atteignit une émission uniforme. Cette différence était due à l'irradiation antérieure du « phosphore » à certains endroits; les zones correspondantes furent déterminées. Nous appellerons ce spectre « spectre 2 ». Nous avons ensuite remis le phosphore, uniformément excité, dans le spectrographe et nous avons fait tomber à nouveau le spectre du fer sur notre plaque; nous appellerons « spectre 3 » ce dernier spectre obtenu.

Nous avons pu constater que les spectres 1, 2 et 3 sont les mêmes dans la limite permise par l'instrument employé. Nous devons à ce résultat l'hypothèse que l'inertie de la première courbe d'excitation doit dépendre de processus existant aussi dans les excitations successives.

(A suivre.)